Etude des propriétés mésoscopiques dans les systèmes quasi-unidimensionnels à onde de densité de charge

Anthony Ayari

▶ **To cite this version:**

Anthony Ayari. Etude des propriétés mésoscopiques dans les systèmes quasi-unidimensionnels à onde de densité de charge. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2002. Français. NNT : . tel-00004231

HAL Id: tel-00004231

https://theses.hal.science/tel-00004231

Submitted on 20 Jan 2004

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourier
Grenoble I

Discipline : Physique

présentée et soutenue publiquement
par :

Anthony AYARI

le 25 Novembre 2002

Étude des propriétés mésoscopiques dans les systèmes quasi-unidimensionnels à onde de densité de charge

---

Composition du jury :

Marcel VALLADE (Président)
Giancarlo FAINI (Rapporteur)
Claude PASQUIER (Rapporteur)
Pascal QUEMERAIS (Examinateur)
Pierre MONCEAU (Directeur de thèse)

Thèse préparée au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures
CNRS - GRENOBLE

"To-morrow, and to-morrow, and to-morrow,
Creeps in this petty pace from day to day
To the last syllable of recorded time,
And all our yesterdays have lighted fools
The way to dusty death. Out, out, brief candle!
Life's but a walking shadow, a poor player
That struts and frets his hour upon the stage
And then is heard no more : it is a tale
Told by an idiot, full of sound and fury,
Signifying nothing."
MACBETH ACT V SCENE V.

Remerciements

Tout d'abord je tiens à adresser mes vifs remerciements à :
- Marcel VALLADE d'avoir eu la gentillesse de présider mon jury
- Giancarlo FAINI et Claude PASQUIER d'avoir accepté d'assumer la tache de rapporteur et de jouer les principales victimes du style parfois laconique de mon manuscript. Je les remercie également pour l'éclairage personnel qu'ils ont apporté sur mes travaux de thèse.
- Pascal QUEMERAIS de m'avoir fait l'honneur d'être membre de mon jury et d'avoir agrémenté ma soutenance de son intérêt pour les interprétations polaroniques (qu'il me pardonne ici de les avoir qualifiées par provocation "d'exotiques"). Je le remercie également pour la pertinence (qu'il cache derrière sa modestie) de ses questions et l'intérêt qu'il a porté à mon manuscript même s'il lui a fallu pour cela puiser dans ses souvenirs et ressortir sa thèse des profondeurs de son armoire.
- Pierre MONCEAU pour avoir encadré ce travail de thèse, pour tout les instants passés ensemble à toutes heures au LCMI, à l'ESRF, aux BT, avec des russes, des japonais ... et pour avoir toujours gardé un œil attentif sur moi malgré tout ce qui l'accapare ces derniers temps et toute l'autonomie dont j'ai pu jouir.

Une grande partie de ce travail de thèse s'est déroulée dans la salle blanche du BT où la vue imprenable (mais un peu jaune) sur la Chartreuse et sur le Vercors n'arrive pas à faire oublier qu'elle est le théâtre de tragédies poignantes (combien d'échantillons y sont morts pour la science ?). Ainsi je tiens à remercier :
- Bernard PANNETIER pour m'avoir aidé à faire mes premiers pas en lithographie électronique et pour m'avoir toujours témoigné sa sympathie et prodigué ses conseils.
- Thierry FOURNIER, Thierry CROZES et les nouveaux venus Olivier POBLE et Bruno FERNANDEZ pour leur disponibilité, leur gentillesse et leur soutien technique dans l'art délicat de la réalisation d'échantillons submicroniques.

J'ai également passé des nuits sans visages, des jours sans lumières (il n'y a pas de fenêtres donnant sur l'extérieure sur ID 10) et des week-end sans grâce (matinée) dans cette machine infernale (l'ESRF) où les électrons tournent en rond et parfois les gens aussi. Pour tout ces "bons moments" (ah bon t'es sûr ?) passés ensemble, je remercie Herwig (avec un H aspiré) REQUARDT pour son indéfectible et agréable compagnie, Roland CURRAT pour son humour ("professeur") et ses goûts musicaux fascinants ("I can boogie but I need a certain song ..."), Emilio LORENZO avec qui mes rapports furent parfois houleux mais toujours francs et corrects, Grubel, Patrick, Henry et son régulateur "intelligent" de chez Oxford.

J'adresse mes remerciements aux services du BT à commencer par Jean Louis BRET pour m'avoir appris qui était plus fort qu'un turc et comment prononcer "output" mais aussi à tout le service électronique sans qui aucune mesure de transport ne pourrait se faire dans ce labo. Je remercie également le service chaudronnerie qui a toujours répondu présent pour une soudure, une fuite, un coup de main ...

Je remercie mes collègues de mésoscopie, la bande du LEPES Thierry KLEIN, Jacques MARCUS (ses petits trucs de cuisine et son côté Géo trouvetout), Sylvain (pour son flegme résistant même à un interogatoire sur le verre de Bragg au p'tit déjeuner), Laurence (chaleureuse et souriante, à vous faire regretter de ne pas être au LEPES) ; au CCC , à tous les thésards du BT et à tonton Danosh pour sa musique épouvantable capable de faire craquer la sérénité ancestrale d'un japonais en moins d'un an, à sa compagnie tantôt très chaleureuse, tantôt bougonne, sa curiosité, son sens critique frisant parfois l'anarchie ...

Enfin je ne puis oublier Hélène qui s'est coltinée à plusieurs reprises la relecture de ce manuscript (et de ses fautes d'orthographe) alors qu'elle n'a jamais voulu savoir (et ne sait toujours pas !) ce qu'est une ODC, qui a lutté pour que le BT ne soit pas mon fort Bastiani, qui m'a si souvent attendu le soir (oui oui j'arrive encore 5 minutes), pour toutes ces balades en montagne (lorsque l'ESRF, le LCMI, le BT et le temps le permettaient !), ses envies chroniques d'évasion bravant mon côté casanier, ses jugements si justes mais trop timides face à mon orgueil et à ma mauvaise foi (profites en bien car c'est le première et la dernière fois que je le reconnais), à tout ce ce qui m'a permis de ne pas être qu'un chercheur-doctorant enfermé dans sa passion (stérile ?), cloîtré dans sa thébaïde et à tous les sentiments qui nous unissent.

Table des Matières

Remerciements i

1 Introduction générale 3
- 1.1 Observation expérimentale du mouvement d'une ODC . . . 5
- 1.2 Description phénoménologique . . . 8
- 1.3 Longueurs caractéristiques du système . . . 10
- 1.4 Approche quantique . . . 12
  - 1.4.1 Le tunneling des solitons . . . 12
  - 1.4.2 Le tunneling selon Bardeen . . . 14
- 1.5 La conversion de porteurs normaux en ODC . . . 16
  - 1.5.1 Types de porteurs dans $NbSe_3$ . . . 16
  - 1.5.2 Injection de porteurs d'énergie plus petite que le gap . . . 18
  - 1.5.3 Injection de porteurs d'énergie plus grande que le gap . . . 20

2 Fabrication des échantillons 25
- 2.1 Obtention d'un échantillon à ODC apte à la mésoscopie . . . 25
  - 2.1.1 Sélection de l'échantillon . . . 26
  - 2.1.2 Amincissement de l'échantillon . . . 28
  - 2.1.3 Fixation de l'échantillon . . . 30
- 2.2 Première étape de lithographie . . . 30
  - 2.2.1 Dessin du motif par lithographie électronique . . . 31
  - 2.2.2 Obtention du masque . . . 34
  - 2.2.3 Obtention de la microstructure ou le supplice de Tantale . . . 34
- 2.3 Seconde étape de lithographie . . . 35
  - 2.3.1 Évaporation de l'Au . . . 35
  - 2.3.2 Obtention des contacts . . . 36
- 2.4 Réalisation d'échantillon par FIB . . . 38
- 2.5 Conclusion . . . 42

3 Transport transverse à l'échelle mésoscopique 43
- 3.1 Mesure de la résistance transverse dans $NbSe_3$ . . . 43
- 3.2 Inhomogénéité d'injection transverse dans les ondes de densité de charge et réduction du champ seuil . . . 45
  - 3.2.1 Revue et analyse des travaux précédents . . . 46
  - 3.2.2 Réalisation d'un échantillon de $NbSe_3$ . . . 53
  - 3.2.3 Résultats expérimentaux et discussion . . . 55
- 3.3 Dépiégeage transverse . . . 58
- 3.4 Conclusion . . . 59

4 Impact des process de salle blanche sur une ODC 61
- 4.1 Résistance négative . . . 61
- 4.2 Constriction dans des échantillons de $NbSe_3$ . . . 63
  - 4.2.1 Réalisation . . . 63
  - 4.2.2 Dispositif de mesure . . . 64

4.2.3 Switching ou défauts d'irradiation 64
4.2.4 Influence d'une constriction 68
4.2.5 Interférence 69
4.2.6 Oscillation sous champ magnétique 70
4.3 Variation de la température de transition 72
4.4 Conclusion 75

5 COHÉRENCE SPATIALE ET COHÉRENCE TEMPORELLE DANS LES ODC 77
5.1 Méthode expérimentale d'étude de la struture d'une ODC 77
5.1.1 Rappels 77
5.1.2 Dispositif expérimental à l'ESRF 78
5.2 Bref horizon des mesures couplées transport/Rayons-X 79
5.2.1 Déformations d'une ODC selon le modèle phénoménologique et premières expériences 80
5.2.2 Déformations d'une ODC près des contacts d'injection et modèle de Brazovskii 82
5.2.3 Relaxation des déformations 83
5.3 Cohérence temporelle et spatiale dans l'état mode locking de $NbSe_3$ 83
5.4 Conclusion 92

6 COHÉRENCE ET INTERACTION ENTRE DEUX ODC 95
6.1 Cas de deux ODC se déplaçant à des vitesses différentes 95
6.1.1 Tension de phase slip 95
6.1.2 Injection de deux courants dans des segments voisins 96
6.1.3 Superposition de deux courants dans le même segment 100
6.2 Coexistence de deux ODC de modulation différente 108
6.2.1 Premières observations d'une possible interaction entre les deux ODC de $NbSe_3$ 108
6.2.2 Anomalies de variation du champ seuil dans un échantillon mésoscopique 111
6.2.3 Première approche par diffraction 111
6.2.4 Deuxième approche par diffraction 114
6.2.5 Discussion et perspectives 115
6.3 Conclusion 116

ANNEXE 119
A.1 Données techniques du process d'élaboration d'un échantillon de type H dans $NbSe_3$ 119
A.1.1 amincissement 119
A.1.2 collage 119
A.1.3 tricouche 119
A.1.4 insolation 119
A.1.5 développement 120
A.1.6 le masque 120
A.1.7 les contacts 120

RÉFÉRENCES 121

Liste des Figures et Tableaux

Figures

1.1 Comparatif entre des électrons libres et un état de Peierls. 3
1.2 Rôle de la phase de l'ODC. 5
1.3 R(T) d'un échantillon de $NbSe_3$. 6
1.4 Courbe de dépiégeage d'un échantillon de $NbSe_3$. 7
1.5 Narrow band noise et shapiro step dans $NbSe_3$. 8
1.6 Tunneling de soliton. 13
1.7 Paire soliton/antisoliton. 13
1.8 Modulation du transport par effet de champ. 15
1.9 Schéma du processus de réflexion d'Andreev. 19
1.10 Profil du courant d'ODC en fonction de la position. 21
1.11 Déplacement de la position du satellite sous courant. 22
1.12 Phase slip dans les ondes de densité de charge. 23

2.1 Schéma d'un échantillon de $NbSe_3$ posé sur un substrat de saphir. 27
2.2 Profil d'un échantillon de $NbSe_3$. 27
2.3 Schéma du processus de gravure anisotrope par RIE. 29
2.4 Recollage et retrait de la colle par RIE. 30
2.5 Évasement d'une résine provoqué par la rétrodiffusion d'électrons d'un faisceau MEB. 32
2.6 Différentes étapes du tricouche. 33
2.7 Masquage de l'échantillon. 34
2.8 Microstructure de $NbSe_3$. 35
2.9 Image MEB d'un échantillon de $NbSe_3$ recouvert d'une couche d'or décollée. 36
2.10 Étape de réalisation des contacts électriques. 37
2.11 Schéma de fonctionnement d'un FIB. 38
2.12 Photographie d'un échantillon de $NbSe_3$ découpé par FIB. 39
2.13 Photographie d'un trou creusé par FIB. 40
2.14 Photographie du bord d'un échantillon de $NbSe_3$ découpé par FIB. 41
2.15 Photographie d'un dépot de Tungstène par FIB 41

3.1 Anisotropie de conductivité en fonction de la température dans $NbSe_3$ . . . 44
3.2 Transfert de quantité de mouvement entre une ODC et un courant transverse. 46
3.3 Réduction du champ seuil par un courant transverse d'après les mesures du groupe de Delft [44] 47
3.4 Lignes de courant dans un échantillon anisotrope quand une tension transverse est appliquée. 48
3.5 Simulation de l'injection transverse dans le cas d'un des échantillons de Delft. 50
3.6 Réduction du champ seuil par un courant transverse d'après les mesures du groupe de Yue *et al.* [84] 51
3.7 Simulation de l'injection transverse dans le cas d'un des échantillons de Yue *et al.* [84]. 52
3.8 Simulation de l'injection transverse dans notre échantillon. 54

3.9 Photographie optique à l'aide d'un microscope à haute résolution d'un échantillon de $NbSe_3$ à la fin du process de lithographie. 55
3.10 Caractéristique I-V à 48K de notre échantillon avec et sans courant transverse. 57
3.11 Chemin de conduction possible dans la direction transverse d'un échantillon de bronze bleu. 59

4.1 Echantillon présentant une résistance négative. 62
4.2 Échantillon de $NbSe_3$ réalisé par FIB. 63
4.3 Caractéristique dV/dI(I) d'une constriction dans $NbSe_3$. 65
4.4 Caractéristique I-V d'un échantillon réalisé par FIB présentant une magnétorésistance négative. 67
4.5 Échantillon de $NbSe_3$ réalisé par FIB comportant 4 électrodes de tension. . 68
4.6 Caractéristique I-V d'une zone proche d'une constriction. 69
4.7 Caractéristique dV/dI(I) d'une zone proche d'une constriction. 70
4.8 Variation de la résistance différentielle d'échantillons de $NbSe_3$ en fonction du champ magnétique. 72
4.9 Variation de la température de transition dans $NbSe_3$, selon la référence [32]. 73
4.10 Augmentation de la température de transition dans $NbSe_3$. 74

5.1 Pic de Bragg avec ses satellites dans un matériau à ODC. 78
5.2 Pics satellites d'une ODC sous différent courants. 80
5.3 Variation de la position d'un pic satellite de $NbSe_3$ en fonction du courant. 81
5.4 Effet des Shapiro step sur la largeur longitudinale d'un pic satellite de $NbSe_3$. 88
5.5 Résistance différentielle et largeur longitudinale du pic satellite en fonction du courant aplliqué et en présence d'une radio-fréquence. 89
5.6 Pic satellite de $NbSe_3$ sous mode locking. 90
5.7 Effet des shapiro step sur la largeur longitudinale d'un pic satellite de $NbSe_3$. 91

6.1 NBN dans un échantillon où deux courants circulent. 97
6.2 Photographie de 2 électrodes d'Or lithographiées. 102
6.3 Dépiégeage en configuration normale et transposée. 103
6.4 Variation spatiale du déplacement du pic satellite sans et avec courant. . . 104
6.5 Courbe dV/dI(I) d'une ODC en présence de 2 courants en sens inverse. . . 105
6.6 Shift d'un pic satellite d'une ODC en présence de 2 courants en sens inverse 106
6.7 Shift d'un autre pic satellite d'une ODC en présence de 2 courants en sens inverse 107
6.8 Variation des champs seuils des deux ondes dans $NbSe_3$ selon la ref. [16]. . 109
6.9 Variation des champs seuils des deux ondes dans $NbSe_3$ selon la ref. [48]. . 110
6.10 Variation des champs seuils des deux ondes dans un échantillon mésoscopique de $NbSe_3$. 112
6.11 Déplacement des pics satellites Q_1 et Q_2 et résistance différentielle en fonction du courant continu appliqué à un échantillon de $NbSe_3$. 113
6.12 Broad band noise (BBN) en fonction du courant continu dans un échantillon de $NbSe_3$. 114

TABLEAUX

1.1 Tableau récapitulatif des différentes longueurs caractéristique dans $NbSe_3$. 12

5.1 Tableau récapitulatif des largeurs du pic satellite pour différentes positions. 92

Étude des propriétés mésoscopiques dans les systèmes quasi-unidimensionnels à onde de densité de charge

Préambule

L'étude des systèmes quasi-unidimensionnels naît et se développe véritablement dans les années 70 après la parution en 1964, d'un article de Little [39] présentant des arguments théoriques selon lesquels certains conducteurs quasi-unidimensionnels pourraient transiter vers un état supraconducteur à des températures bien au-dessus de la température ambiante[1]. Il se forme alors d'étroites collaborations entre physiciens et chimistes qui réalisent de grands progrès dans la synthèse d'échantillons quasi-unidimensionnels. Cette étude des systèmes quasi-unidimensionnels mena bien à la découverte de transitions de phase, mais tout d'abord vers une phase à onde de densité de charge. Cette phase présentait une grande richesse de propriétés de transport assez similaires à celles des phases de vortex. Par exemple, il apparaît des effets non linéaires dans les courbes I-V. Ces effets non-linéaires furent d'abord découverts en 1976 dans $NbSe_3$, puis, interprétés comme un état glissant de l'onde de densité de charge par J. Bardeen.

Ce n'est que quelques années plus tard que la supraconductivité dans des systèmes quasi-unidimensionnels fut découverte, mais leurs températures de transition n'ont encore jamais dépassé une dizaine de Kelvin ($\sim$ 13 K). De nos jours, il n'y a guère plus que le Japon qui continue de financer des projets de recherches ambitieux dans cette direction.

Les systèmes à onde de densité de charge ont pour leur part été l'objet d'études intensives, essentiellement au cours des années 80, qui ont petit à petit conduit à décrire tous les aspects de leur dynamique par un modèle phénoménologique classique. Ce consensus se fit au grand dam de Bardeen qui a toujours soutenu l'idée selon laquelle les troublantes propriétés de cohérence des ondes de densité de charge et la nature même de ces ondes[2] ne pouvaient être décrites que par un modèle quantique.

Au cours de ces mêmes années 80, soutenue par le développement des nouvelles technologies de microfabrication, il apparut une nouvelle branche de la physique de la matière

[1] Il avait imaginé un système constitué d'une longue chaîne conductrice et de molécules latérales dont les électrons se polarisent au passage des électrons de la chaîne conductrice. Le fait que ce soit des électrons et non le réseau qui se polariserait, ferait augmenter la température de transition. En effet dans l'expression de la température de transition $T_c \propto 1/\sqrt{M}$, ce serait la masse de l'électron et non celle des atomes du réseau qui interviendrait

[2] Mais sont-ce vraiment des ondes ?

condensée, que l'on désigne maintenant par le terme de mésoscopie. La mésoscopie traque toutes les manifestations d'états cohérents quantiquement, de préférence dans les systèmes de taille réduite (*i.e.* "à mi chemin entre le macroscopique et le microscopique"). Il est donc assez naturel d'imaginer un rapprochement entre la physique des ondes de densité de charge et la mésoscopie, forte de ses succès en supraconductivité, en transport dans les semiconducteurs (tel que le GaAs) et dans les couches minces métalliques.

Ainsi, deux groupes (à Delft et ici au CRTBT) ont entrepris de revisiter les propriétés de cohérence des ondes de densité de charge par le biais de la physique mésoscopique. Des mesures sur des échantillons de petites tailles mirent en évidence des propriétés évoquant l'existence d'un effet de cohérence quantique type Aharonov/Bohm et la possibilité que les processus de conversion entre une onde de densité de charge et un électron soient nettement plus faciles que dans des échantillons macroscopiques. C'est dans le prolongement de ces recherches que s'inscrit cette thèse : Le chapitre 1 donne un aperçu général des connaissances de base sur les ondes de densité de charge ainsi que des dernières approches théoriques de la physique mésoscopique des ondes de densité de charge. Le chapitre 2 détaille les différents process de microfabrication utilisés ou développés au cours de cette thèse. Le chapitre 3 revisite une expérience de groupe de Delft sur l'influence d'une force transverse sur le mouvement d'une onde de densité de charge dans un système quasi-unidimensionnel. Le chapitre 4 traite de l'influence des process de salle blanche sur la qualité et les propriétés des matériaux à onde de densité de charge. Les chapitres 5 et 6 sont consacrés à des mesures couplées de transport et de diffraction. La coexistence d'une cohérence spatiale et temporelle dans les ondes de densité de charge fait l'objet du chapitre 5. Enfin, le chapitre 6 est dédié à l'interaction et à la cohérence entre deux ondes de densité de charge.

1

Introduction générale

C'est en 1930 que Peierls prédit un phénomène [58, 59], qui est à l'origine de ce que l'on appelle les ondes de densité de charge (ODC). Il partit du cas d'école suivant : dans certains solides conducteurs les électrons interagissent peu entre eux ou avec le réseau et peuvent être décrits par le modèle des électrons libres. A une dimension, leur énergie est alors $\epsilon(k) = \hbar^2 k^2/2m$ (voir figure 1.1), avec $\hbar$ la constante de Planck, k le vecteur d'onde de l'électron et m sa masse.

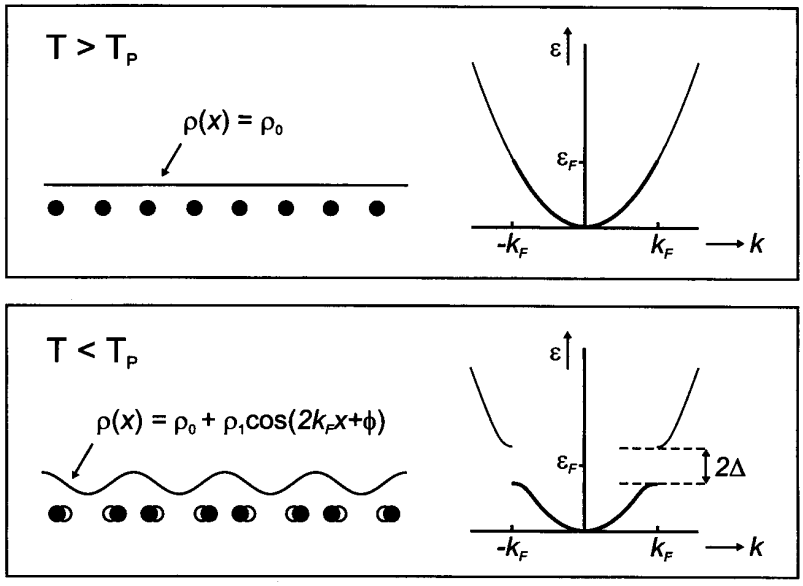


Fig. 1.1: Comparatif entre des électrons libres (en haut) et un état de Peierls (en bas). A droite : schéma d'une bande électronique. A gauche : densité électronique et position des atomes.

Il est possible d'affiner cette description en introduisant perturbativement le potentiel périodique dû au réseau. On a alors l'ouverture d'un gap dans la bande d'énergie car le potentiel couple maintenant des états séparés par un vecteur d'onde $\vec{K}$ appartenant au réseau réciproque. Si ces états sont de même énergie (ce qui est le cas pour les états de vecteurs d'ondes $\pm\overrightarrow{K/2}$), il y a levée de dégénérescence et les nouvelles fonctions d'ondes sont un enchevêtrement (*i.e.* une combinaison linéaire) des fonctions d'onde des électrons

libres. On peut constater que l'ouverture du gap a pour effet d'abaisser l'énergie des électrons de vecteur d'onde $|\mathrm{k}| < |\mathrm{K}|/2$ et de l'augmenter dans les autres cas.

L'idée de Peierls est alors la suivante : il est possible de diminuer l'énergie électronique totale du système en ouvrant un gap au niveau de Fermi à condition de trouver un couplage de vecteur d'onde $2\overrightarrow{k_F}$ provenant par exemple du réseau cristallin sous-jacent. Il faudrait donc que le réseau se distorde d'une périodicité supplémentaire en π/k_F, ce qui a un coût d'énergie élastique (puisque le réseau est à l'équilibre sans cette surmodulation). Les calculs montrent que ce coût est plus faible que la diminution de l'énergie électronique, donc tout réseau unidimensionnel est instable à cause de cette interaction électron-phonon de vecteur d'onde $2\mathrm{k}_F$: c'est la transition de Peierls. Il faut néanmoins un léger couplage tridimensionnel (car il ne peut y avoir de transition de phase à une dimension) et être à basse température, car sinon les électrons peuvent être à des énergies au-dessus du niveau de Fermi et donc se retrouveraient au dessus du gap (*i.e.* à une énergie supérieure) s'il y avait transition.

La transition de Peierls s'accompagne aussi d'une modulation de la charge électronique. En effet, l'hamiltonien d'un électron après transition de Peierls est :

$$\mathcal{H} = \frac{p^2}{2m} + \Delta e^{i2k_F x} + \Delta^* e^{-i2k_F x} \tag{1.1}$$

où l'on n'a gardé que l'énergie cinétique et la composante de Fourier en $2\overrightarrow{k_F}$ du potentiel dû au réseau (approximation de champ moyen). $\Delta = |\Delta| e^{i\varphi}$ est le paramètre d'ordre du système.

Les fonctions d'ondes sont alors du type :

$$\Psi_k(x) = |A_k| e^{-i\varphi/2} e^{ikx} + |B_k| e^{i\varphi/2} e^{i(k-2k_F)x} \tag{1.2}$$

et la densité électronique est bien modulée spatialement :

$$\rho(x) = \sum_k \Psi_k^*(x)\Psi_k(x) = \rho_0 + \rho_1 cos(2k_F x + \varphi) \tag{1.3}$$

On remarque que la phase intervient dans l'expression de la densité et qu'augmenter la valeur de la phase revient à déplacer en bloc la charge modulée (voir figure 1.2). Donc, s'il existe un moyen d'augmenter la valeur de la phase, il existe un moyen de déplacer cet ensemble de charge modulé qu'on appelle ODC.

C'est Fröhlich [17], en 1954, qui établit que malgré l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi, il existe un moyen de transporter des charges. On peut voir ceci de la manière

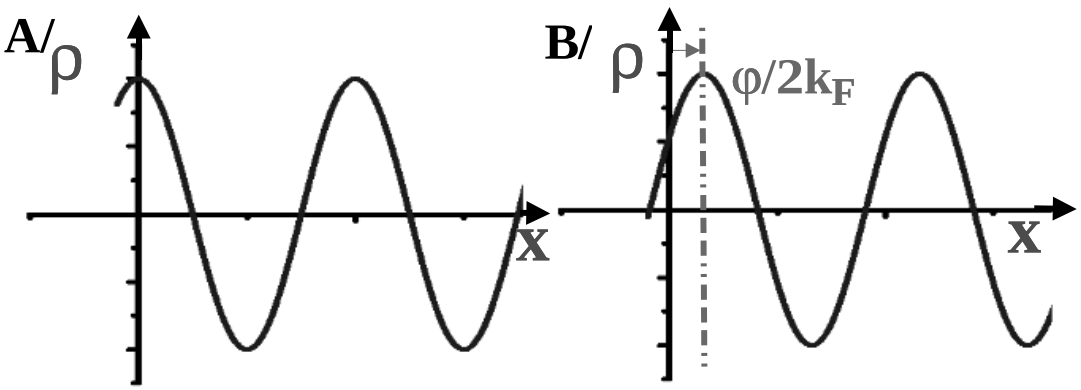


FIG. 1.2: Schéma d'une onde de densité de charge pour : A/ une valeur nulle de la phase, B/ une valeur positive de la phase.

suivante : si l'onde est incommensurable (*i.e.* la périodicité du réseau et celle de l'onde n'ont pas un rapport fractionnaire), alors toutes les positions de l'onde par rapport au réseau sont équivalentes énergétiquement. Il y a invariance par translation et déplacer l'onde ne coûte pas d'énergie, c'est ce que l'on appelle la supraconductivité de Fröhlich. Néanmoins, cette invariance par translation peut être brisée par commensurabilité ou par interaction avec les impuretés : l'onde est alors piégée. Le piégeage par les impuretés provient du fait que la phase du paramètre d'ordre (qui gouverne la dynamique de l'ODC) est reliée directement avec l'expression de la densité électronique (voir l'equation 1.3), qui se couple aux impuretés par interaction coulombienne alors que pour la véritable supraconductivité la phase est un opérateur conjugué (au sens quantique) de la densité. Ainsi, quand la phase supra est fixe, la densité est indéterminée et ne peut se coupler aux impuretés. En des termes plus savants, on peut également dire qu'il n'y a pas ODLRO (off diagonal long range order) pour l'opérateur densité de l'ODC [82].

1.1 Observation expérimentale du mouvement d'une ODC

Dans les années 70, différents composés montrant une transition ODC furent découverts, mais c'est en 1976 sur $NbSe_3$ que le mouvement d'une ODC fut observé [49]. Les échantillons se présentent sous forme de rubans d'une dizaine de microns de large, de quelques microns d'épaisseur et de quelques millimètre de longueur. Comme leur conductivité à l'ambiante est meilleure suivant l'axe du ruban, on dit que ce sont des échantillons anisotropes ; on parle même de matériau quasi 1D car la surface de Fermi ne se referme pas (1D), mais elle est légèrement gondolée (quasi). Il existe également des matériaux quasi 2D où la surface de Fermi ne se referme que suivant une direction. Cristallographique-

ment $NbSe_3$ a une structure monoclinique avec a = 10,006 Å, b = 3,48 Å, c = 15.63 Å, γ =109.30°, il est constitué de 3 paires de chaînes qui sont dirigées le long de la direction $\vec{b}$ qui est également l'axe du ruban.

A pression ambiante, $NbSe_3$ est métallique sur toute la gamme de températures explorables, mais sa conductivité en fonction de T montre deux anomalies (voir figure 1.3). Ces

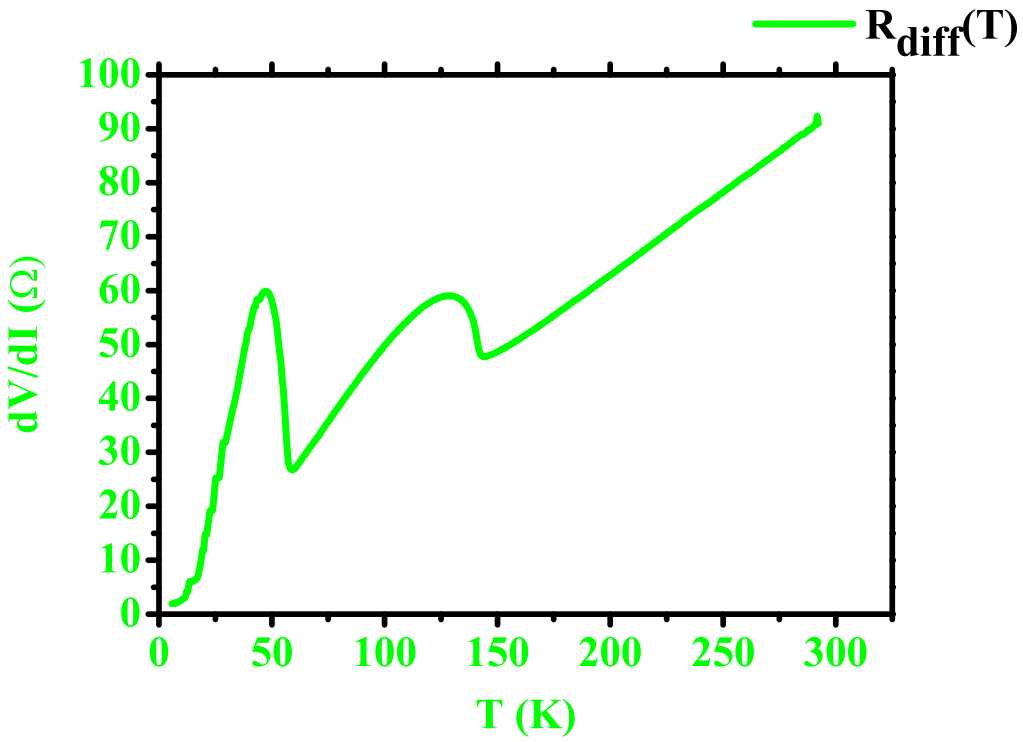


FIG. 1.3: Variation de la résistance d'un échantillon de $NbSe_3$ en fonction de la température avec ses deux anomalies à 145 K et 59 K.

deux anomalies, comme on peut le voir par rayons X, correspondent à deux transitions de Peierls à T = 145 K et T = 59 K. Ainsi, pour T supérieur à 145 K l'échantillon se comporte comme un conducteur normal avec une résistance décroissant linéairement avec la température. A T = 145 K, un gap apparaît en un point de la surface de Fermi et s'ouvre progressivement. Alors, de moins en moins d'électrons participent à la conduction et la résistance augmente quand la température diminue. Ensuite, comme la surface de Fermi n'est pas strictement 1D, seuls les électrons pouvant être couplés à un autre électron par le même vecteur $2\overrightarrow{k_F}$ de la surmodulation peuvent transiter en ODC. Lorsqu'il reste des électrons qui ne transitent pas et qui restent métalliques, on dit qu'il n'y a pas un parfait "nesting" (*i.e.* emboîtement) de la surface de Fermi. La résistance atteint donc un maximum puis rediminue à cause des électrons restants. Lors de la première anomalie, toutes

les chaînes ne sont pas condensées, puis après la deuxième anomalie, quasiment tous les électrons restants transitent, mais avec un vecteur de surstructure différent. Par contre, lorsqu'il y a un parfait "nesting", l'échantillon devient isolant en dessous de la transition de Peierls, c'est le cas du composé $K_{0,3}MoO_3$ (bronze bleu).

Nous avons dit qu'après la transition la résistance augmentait parce que les électrons condensés ne participaient pas à la conduction. Cependant, si l'on injecte un courant continu dans l'échantillon, sa résistance est constante (loi d'Ohm) jusqu'à une valeur seuil. Pour un courant plus élevé, la résistance de l'échantillon chute (voir figure 1.4), car l'ODC se met en mouvement alors qu'avant elle était immobile. Une autre preuve de la mise

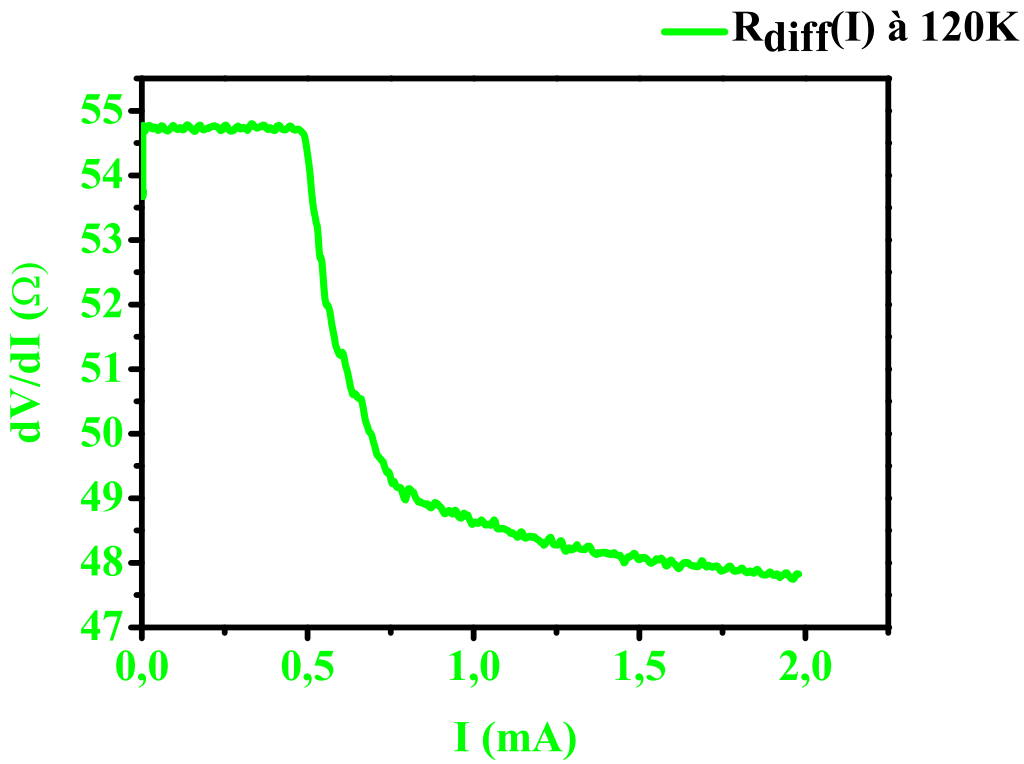


FIG. 1.4: Variation de la résistance différentielle d'un échantillon de $NbSe_3$ en fonction du courant continu à 120 K. On peut noter le fort décrochage de la résistance à partir du courant seuil I = 0,6 mA

en mouvement de l'ODC est l'apparition d'une tension alternative après le seuil. Cette tension alternative V se décompose en un bruit large bande (BBN : broad band noise) en $V \sim f^{\alpha}$ (où f est la fréquence du bruit) et un bruit périodique (NBN : narrow band noise) dont la fréquence augmente linéairement avec le courant de l'ODC. Cette fréquence peut comporter de nombreuses harmoniques (voir figure 1.5) et son amplitude V_{rms} est de l'ordre de 10 à 100 μV, suivant la température et la qualité de l'échantillon [53] ce qui

est nettement plus faible que la tension continue appliquée. Ces oscillations proviennent

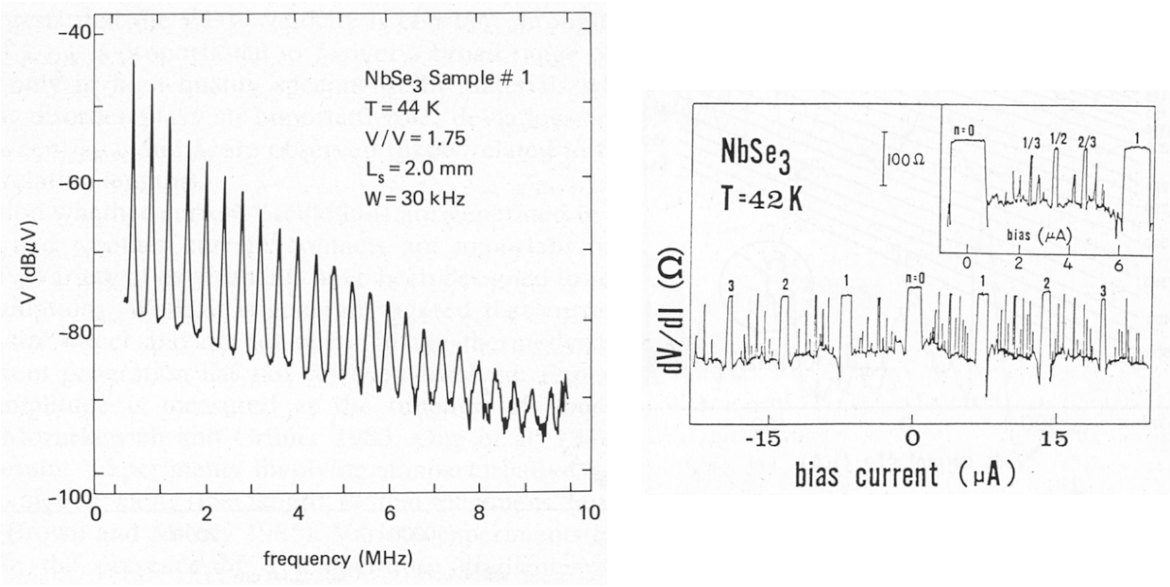


FIG. 1.5: A gauche : spectre de Fourier de la tension alternative mesuré sur un échantillon de $NbSe_3$ en réponse à un courant continu au dessus du seuil de dépiégeage [75]. A droite : variation de la résistance différentielle d'un échantillon de $NbSe_3$ en fonction du courant continu pour une radiofréquence fixe [27].

du fait que la charge de l'ODC est modulée spatialement (en π/k_F et que lorsqu'on la met en mouvement à vitesse constante, cette modulation de la charge peut créer une modulation de tension de fréquence $f = k_F v/\pi$. En revanche, il n'a pu être déterminé si la génération de ce bruit périodique provenait de l'interaction de l'ODC avec des impuretés ou de la conversion d'électrons normaux en ODC au niveau des contacts. Il est également possible de faire interférer cette fréquence avec une radio fréquence (rf) extérieure [50]. L'onde essaye alors de faire coïncider sa fréquence propre, ou une de ses harmoniques, avec la fréquence du signal externe, ceci est possible tant que la fréquence de l'ODC n'est pas trop éloignée de la fréquence externe. Dans cette plage de fréquence ou de manière équivalente dans cette plage de courant, l'ODC a une fréquence de NBN fixe égale à la fréquence extérieure. L'ODC ne réagit alors plus aux variations de courant continu et garde une vitesse constante. La résistance différentielle de l'échantillon sur cette plage provient donc uniquement de la résistance différentielle des électrons normaux (voir figure 1.5) puis elle retourne à sa valeur sans rf.

1.2 Description phénoménologique

Il est possible de décrire la dynamique de l'onde à l'aide de la phase du paramètre d'ordre. En effet, la phase (d'après ce que nous avons vu à la figure 1.2) donne la position de l'ODC par rapport au réseau. Il reste alors à déterminer qu'elles sont les différentes

forces qui influent sur le comportement de l'onde et comment elles se couplent à la phase. Ces forces sont :

- l'interaction avec le champ électrique :

$$\mathcal{H}_1 = \int E\varphi dx$$

  car on constate expérimentalement que l'ODC est sensible au champ électrique.

- l'interaction coulombienne avec les impuretés :

$$\mathcal{H}_2 = \int V_{impur}(x)\rho_{ODC}(x)dx \simeq \int V_{impur}(x)\cos(2k_F x + \varphi)dx$$

$$\simeq \sum_i \int V_{impur}(x)\delta(x - x_i)\cos(2k_F x + \varphi)dx \simeq \sum_i V_{impur}(x_i)\cos(2k_F x_i + \varphi_i)$$

  afin d'expliquer le piégeage, où V_{impur} est le potentiel coulombien des impuretés et φ_i la valeur de la phase au point x_i. Cette interaction tend à placer les maxima de densité de l'ODC (i.e. le point où l'onde est la plus négative) à la position des impuretés positives et les minima de densité de l'onde à la position des impuretés négatives. L'ODC peut alors se déformer pour minimiser son énergie coulombienne et il devient difficile de la déplacer de cette position privilégiée : l'onde est piégée.

- la rigidité de l'onde :

$$\mathcal{H}_3 = \frac{1}{2}\int K(\frac{\partial\varphi}{\partial x})^2 dx$$

  où K est la constante de raideur de l'onde. En effet, la modulation de l'onde est originellement imposée par le remplissage de la bande électronique $2k_F$. On modélise alors les distorsions par rapport à la périodicité en $2k_F$ par une énergie élastique en $\frac{1}{2}K(\Delta l)^2$ où le rôle de l'élongation Δl sera joué par tout écart à la périodicité spatiale en $2k_F$, c'est à dire, par le gradient spatial de la phase d'après l'équation 1.3.

Alors, en introduisant un frottement fluide de coefficient γ pour prendre en compte la dissipation dans l'ODC et en négligeant les effets inertiels, on obtient l'équation du mouvement suivante où $\mathcal{H}$ est la somme des trois hamiltoniens précédents :

$$\gamma\dot{\varphi} = \frac{\partial\mathcal{H}}{\partial\varphi} \tag{1.4}$$

$$E - \gamma\dot{\varphi} - K\frac{\partial^2\varphi}{\partial x^2} + V\cos\varphi = 0 \tag{1.5}$$

Il est ainsi possible d'expliquer l'existence d'un champ seuil (i.e. il existe un champ $\overrightarrow{E}$ maximal tel que $\dot{\varphi} = 0$ est réalisable) et du NBN (provenant dans ce cas de la périodicité de l'interaction avec les impuretés). Néanmoins, ce modèle est un modèle classique où

l'onde est considérée comme un milieu continu déformable assez semblable aux phases de vortex, il ne peut pas prendre en compte d'éventuels effets de cohérence quantique et il n'est plus valable sur des petites échelles de temps ou de longueur.

1.3 Longueurs caractéristiques du système

- Longueur d'onde de l'ODC $\lambda_{2k_F} = \pi/k_F$: c'est la période de l'onde au repos et sans impureté, elle est de l'ordre de quatre fois le paramètre de maille $NbSe_3$ suivant $\overrightarrow{b}$ (avec b $\simeq$ 3,48 Å) car $k_F \simeq 0,241 * \pi/b$ pour la première transition et $k_F \simeq 0,26 * \pi/b$ pour la deuxième transition.
- Longueur de cohérence d'amplitude ξ : c'est la longueur qui intervient avec le terme en gradient spatial dans l'équation de Ginzburg-Landau de l'amplitude du paramètre d'ordre. Si le gradient du paramètre d'ordre est élevé par rapport à cette longueur, cela signifie que cette déformation coûte beaucoup d'énergie au système, elle est énergétiquement défavorable. C'est pourquoi on dit que $\xi = \hbar v_F/(\pi\Delta)$ est la longueur caractéristique minimale sur laquelle le paramètre d'ordre peut passer de sa valeur maximale à la valeur zéro (voir [76] p. 118). Dans $NbSe_3$ comme dans les supraconducteurs haut-T_c, ξ est très petit (ici 61 Å selon [25]), car le gap est grand.
- Libre parcours moyen électronique : c'est la distance moyenne parcourue par un électron entre deux chocs avec des impuretés ou des phonons. On distingue deux longueurs : le libre parcours moyen élastique (i.e. entre deux collisions élastiques avec le réseau ou avec des impuretés) que l'on peut estimer à partir des mesures de mobilité. La mobilité dans $NbSe_3$ est très élevée à basse température [55] ce qui conduit à de grands libres parcours moyens : $l_e = v_F\tau$ et $\mu = \frac{e\tau}{m}$ soit $l_e = \frac{v_F m \mu}{e}$, ce qui donne $l_e \simeq 50$ μm à 4 K et 0,5 μm à 60 K (avec $\mu = 30$ m^2/Vs à 4K et 0,1 m^2/Vs à 60K, $v_F = 3 * 10^5$ m/s, m vaut environ deux fois la masse de l'électron $m_e = 9,1 * 10^{-31}$ kg et e = 1,6 * 10 $^{-19}$ C). On peut aussi définir un libre parcours moyen inélastique (*i.e.* entre deux collisions inélastiques). Cette longueur est plus grande que la précédente car un électron peut subir plusieurs collisions élastiques avant d'avoir une collision inélastique. C'est cette longueur que l'on considère comme la longueur de cohérence de phase électronique (*i.e.* la longueur sur laquelle l'électron conserve la phase de sa fonction d'onde ou du moins la mémoire de ses précédentes trajectoires). Elle se mesure à l'aide des variations de la résistance de l'échantillon sous faible champ magnétique et est extraite en fittant par des formules universelles de localisation faible.
- Longueur de cohérence de la phase du paramètre d'ordre L_φ : c'est la longueur sur

laquelle la phase de paramètre d'ordre varie de 2π. On peut déterminer cette longueur dans le cadre de la théorie phénoménologique des ODC. Dans le cas où l'interaction avec les impuretés est forte (strong pinning), l'ODC est déformée à chaque impureté et L_φ est égale à la distance moyenne entre impuretés $L_\varphi = \frac{1}{n_i^{\frac{1}{3}}}$ où n_i est la densité d'impuretés. Dans le cas où la rigidité de l'onde est plus forte que l'interaction avec les impuretés (weak pinning), l'onde se déforme continûment, mais sur de plus grandes distances que celles séparant deux impuretés. C'est donc l'effet d'un grand nombre d'impuretés qui brise la cohérence de la phase sur une longueur $L_\varphi \propto \frac{K}{V}^2 \frac{1}{n_i}$ que l'on nomme aussi longueur de Fukuyama-Lee-Rice [34, 18] ou longueur de Larkin-Ovchinikov dans les vortex. Il peut paraître surprenant que des impuretés distribuées aléatoirement dans l'échantillon puissent avoir un effet coopératif sur de grandes distances alors qu'individuellement elles sont incapables de déformer l'onde. En effet, on pourrait croire que la moyenne spatiale de l'interaction de l'onde avec ces impuretés (en $\cos\varphi$ comme nous l'avons vu au paragraphe précédent) est nulle. En fait, on assimile cette interaction à une marche au hasard et sa valeur moyenne est calculée sur toutes les configurations d'impuretés possibles et non sur une seule. On obtient alors une interaction en $\sqrt{L}$ (où L est la distance sur laquelle on moyenne l'interaction). L_φ est alors la longueur pour laquelle l'énergie d'interaction avec les impuretés égale l'énergie élastique. On peut noter que cette longueur n'existe qu'à la limite thermodynamique, où l'on peut considérer que l'échantillon réalise toutes les configurations d'impuretés possibles. Sur des échantillons de taille mésoscopique (*i.e.* de la taille de la longueur de cohérence), cette longueur ne peut être aussi simplement calculée. La phase ne varie peut-être pas continûment et les impuretés agissent sûrement moins coopérativement. En général, L_φ est supérieure au micromètre dans la direction longitudinale d'après les mesures aux rayons X [14], où l'on mesure un pic satellite provenant de la distorsion du réseau après transition de Peierls (la largeur du pic étant inversement proportionnelle à L_φ).

– Longueur de phase slip : C'est la longueur liée au processus de conversion électrons normaux/ODC (nous rentrerons plus dans les détails au paragraphe 1.5).

On pourrait également définir une longueur caractéristique des phénomènes de cohérence de vitesse dans le condensat, mais il existe pour l'instant assez peu d'informations sur celle-ci.

Lorsque l'on réduit les dimensions de l'échantillon, ces différentes longueurs de cohérence deviennent significatives et donnent lieu en général à de nouveaux phénomènes physiques que l'on rassemble sous le terme de physique mésoscopique. On est alors confronté

	Expression analytique	Ordre de grandeur
Période spatiale de l'ODC	$\lambda_{2F} = \pi/k_F$	14,4 Å ou 13,4 Å
Longueur de cohérence d'amplitude	$\xi = \hbar v_F/(\pi\Delta)$	61 Å ([25] p.59)
Libre parcours moyen électronique	$l_e = v_F m\mu/e$	50 μm (4 K)/0,5 μm (60 K)
Longueur de cohérence de la phase	l_φ	1 à 10 μm
Longueur de phase slip	λ ou L_{ps}	100 μm
Dimension de l'échantillon	L*w*d	5 mm * 10 μm * 1 μm

TAB. 1.1: Tableau récapitulatif des différentes longueurs caractéristiques dans $NbSe_3$.

essentiellement à ces deux interrogations : comment décrire l'ODC par une fonction d'onde quantique et en quoi consiste les phénomènes de conversion d'électrons en ODC ?

1.4 Approche quantique

Dès les premières tentatives d'explication des propriétés de transport du $NbSe_3$, des modèles quantiques ont été proposés. Ils se basent sur l'idée que l'on passe de l'état piégé à l'état glissant par tunneling. Le premier à proposer cette idée fut Maki [40].

1.4.1 Le tunneling des solitons

Dans ce modèle, on utilise la description phénoménologique du transport de l'ODC, où le potentiel de piégeage est en $\cos\varphi$, le terme d'inertie en $\partial^2\varphi/\partial t^2$ n'est pas négligé et où on ne prend pas en compte le frottement. On considère qu'au repos l'ODC a choisi une valeur de la phase φ_0 homogène spatialement tel que le potentiel d'impuretés soit minimisé. Puis, on applique un champ électrique, ce qui a pour conséquence d'incliner le potentiel total auquel est soumise l'onde (voir figure 1.6). L'état φ_{-1} est à une énergie plus basse que φ_0 mais ces deux états sont séparés par une barrière de potentiel. On peut donc imaginer un processus de tuneling de φ_0 vers φ_{-1}. Ce processus naîtrait en un point de l'échantillon, puis se propagerait à l'aide d'une paire soliton/antisoliton (voir figure 1.7).

A ce stade, il convient de définir ce qu'est un soliton : il existe des solutions d'équations différentielles à 1D non linéaires, dispersives, qui ont la propriété d'être des ondes progressives (*i.e.* ne dépendant que de (x-ut), où x est la variable d'espace, t la variable temporelle et u sa vitesse) localisées spatialement, ou dont la dérivée est localisée (*i.e.* non

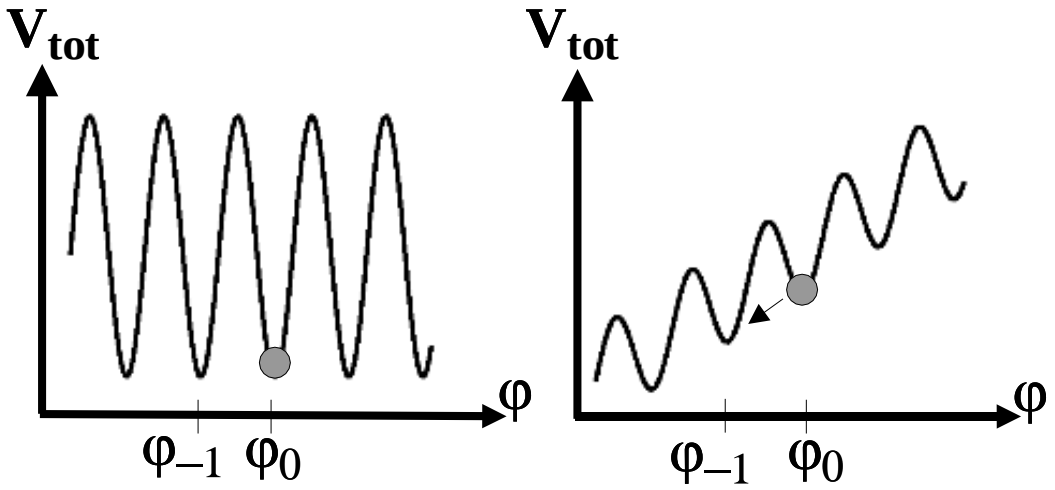


FIG. 1.6: Schéma représentant le tunneling de soliton selon Maki. Le condensat de phase homogène φ_0 à champ nul est symbolisé par un disque gris. Lorsque le champ électrique $\overrightarrow{E}$ est différent de $\overrightarrow{0}$ le condensat passe à la valeur φ_{-1} par effet tunnel.

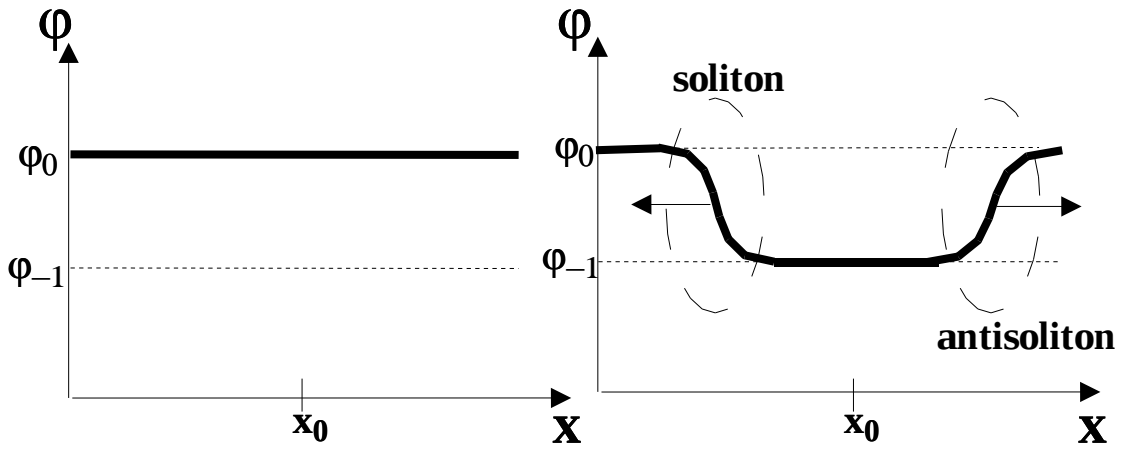


FIG. 1.7: Propagation d'une paire soliton/antisoliton à partir du point x_0. A gauche, l'état avant tunneling. A droite : état après tunneling. Les traits pleins indiquent l'état énergétique ou la valeur de la phase du système en fonction de la position. Les traits pointillés indiquent les minima locaux de l'énergie. Les ellipses indiquent où sont le soliton et l'antisoliton.

nulle sur un segment fini de l'espace) et qui n'interagissent pas lorsqu'elles rencontrent une autre onde progressive localisée. Ces solutions, appelées solitons, sont souvent utiles en physique car ce sont des excitations assimilables à des quasiparticules sans interaction entre elles. Ici, l'équation gouvernant la dynamique de l'ODC est de la forme d'une des

équations les plus connues nommée l'équation de Sine Gordon :

$$\frac{\partial^2\varphi}{\partial t^2} - C_0\frac{\partial^2\varphi}{\partial x^2} + \omega_0^2 \sin\varphi = 0 \tag{1.6}$$

Il en existe des solutions du type soliton, d'équation :

$$\varphi(x,t) = 4\arctan(\exp(\pm\frac{\omega_0(x-ut)}{C_0\sqrt{1-u^2}})) \tag{1.7}$$

Ces solutions correspondent à un saut de phase de $\pm 2\pi$ (*i.e.* $|\varphi(x = +\infty) - \varphi(x = +\infty)| = 2\pi$). Ces solitons se déplacent à la vitesse $\pm u$ (le signe $\pm$ distinguent les solitons des antisolitons et transportent une charge $\mathrm{e}^* = \pm\ \mathrm{n}_{CDW}\mathrm{e}\ 2\pi/2\mathrm{k}_F$ où n_{CDW} est la densité d'électrons condensés en ODC, e la charge de l'électron et k_F le vecteur d'onde de Fermi). Ainsi, une paire soliton/antisoliton permet de passer de l'état φ_0 à φ_{-1}. Maki suggère ensuite que ces paires solitons/antisolitons relaxent sous forme de phasons qui sont les excitations élémentaires de la phase du paramètre d'ordre. Par exemple, le phason de vecteur d'onde $\mathrm{k} = 0$ est le mode de translation uniforme du condensat. L'inconvénient de ce modèle est que, compte-tenu des températures relativement élevées mises en jeu, le phénomène de tunneling devrait être masqué par le transport par solitons thermiquement activé. De plus, dans un processus de tunneling quantique, le champ seuil devrait être indépendant de la température, tandis qu'expérimentalement il suit une loi thermiquement activée $\mathrm{E}_{th} \propto \mathrm{e}^{E/kT}$.

1.4.2 Le tunneling selon Bardeen

L'idée de Bardeen [5, 6, 7] est de considérer la phase du paramètre d'ordre comme une variable cohérente macroscopique et quantique. Pour cela, lui non plus ne néglige pas les effets d'inertie et introduit dans l'hamiltonien du système le terme d'énergie cinétique en plus du potentiel périodique dû aux impuretés, en revanche, il néglige les forces élastiques au sein du condensat :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2}m\dot{\varphi}^2 + V(\varphi) \tag{1.8}$$

Du point de vue quantique, il faut alors déterminer la fonction d'onde $\psi(\varphi)$ du système vecteur propre de l'hamiltonien. Par analogie avec les électrons dans un solide, les fonctions d'onde vont être du type fonctions de Bloch et le potentiel périodique va ouvrir un gap dans la bande d'énergie pour $\mathrm{k} = \pm\mathrm{k}_F$. Il faut une fonction d'onde par électron condensé. Donc, la première bande d'énergie des fonctions d'onde de la phase est pleine. Lorsque l'on applique un champ électrique $\vec{E}$ le vecteur d'onde $\overrightarrow{k}$ d'une fonction d'onde du système va être soumis à l'équation :

$$\hbar\frac{dk}{dt} = qE \tag{1.9}$$

où q est la charge véhiculée par cette fonction $\psi_k(\varphi)$. k peut alors augmenter jusqu'à k_F, si on néglige la diffusion (par les phonons par exemple). Arrivé en k_F, soit la fonction subit une réflexion de Bragg en -k_F et alors aucun courant ne circule en moyenne, car cette bande est totalement occupée, soit la fonction d'onde tunnelle vers la bande d'énergie supérieure et l'onde est dépiégée. Mais, Bardeen se distingue principalement de Maki en considérant que le système est cohérent. On a alors la même fonction d'onde $\psi_k(\varphi)$ pour toutes les chaînes d'un même domaine de cohérence. Comme ceci implique un grand nombre de chaînes ($\sim 10^4$), le gap est cette fois plus grand que kT. Ce modèle a eu longtemps l'avantage de prédire et de décrire l'équivalence entre la conductivité $\sigma(E)$ et la conductivité en fréquence $\sigma(\omega)$, mais un calcul plus poussé a permis à la théorie classique d'établir également cette relation [45]. En revanche, la théorie est incapable d'expliquer les phénomènes d'hysterésis et de métastabilité des ODC. En effet, ces phénomènes nécessitent une description autorisant un grand nombre de degrés de liberté incompatible avec la notion de cohérence macroscopique.

De nos jours, il ne subsiste qu'un seul défenseur de ces modèles de tunneling [46, 47]. Celui-ci a étendu le modèle de Bardeen pour y inclure la possibilité d'un grand nombre de degrés de liberté dans un volume cohérent quantiquement. Son modèle est fondé sur une analogie avec le blocage de Coulomb et le tunneling dans les SET. Il parvient ainsi à expliquer le phénomène de diminution du champ seuil observé dans des échantillons de $NbSe_3$ lorsqu'ils sont soumis à une tension de grille (voir ref. [1] et figure 1.8).

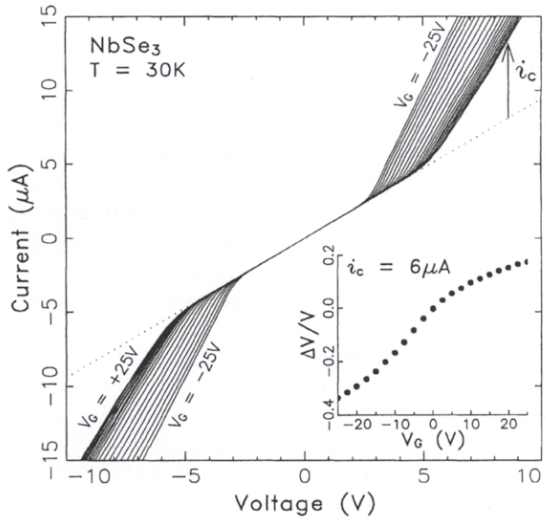


FIG. 1.8: Caractéristique I-V d'un échantillon de $NbSe_3$ soumis à différentes tensions de grille. L'encart montre la variation de la tension aux bornes de l'échantillon pour un courant d'ODC fixe en fonction de la tension de grille.

1.5 La conversion de porteurs normaux en ODC

Pour étudier les propriétés de transport d'un échantillon à ODC, il convient de relier celui-ci à une source de courant par des contacts ohmiques. Or, la source de courant débite des électrons normaux alors que dans les ODC les charges électriques sont transportées par une plus grande variété de porteurs. Il y a donc besoin de convertir les électrons normaux de la source de courant en porteurs de charge des ODC.

1.5.1 Types de porteurs dans $NbSe_3$

Tout d'abord, il est nécessaire de clarifier quels sont les types de porteurs existant dans $NbSe_3$. Pour ce faire, on part de l'hamiltonien 1D de la théorie de champ moyen écrit selon le formalisme de la seconde quantification :

$$\mathcal{H} = \sum_{k>0,\sigma} \epsilon_k a^+_{k\sigma} a_{k\sigma} + \epsilon_{k-Q} a^+_{k-Q\sigma} a_{k-Q\sigma} + [\Delta(\varphi) \sum_{k>0,\sigma} a^+_{k\sigma} a_{k-Q\sigma} + c.c.] \tag{1.10}$$

où $a^+_{k\sigma}$ est l'opérateur de création d'un électron libre de vecteur d'onde $\overrightarrow{k}$ et de spin σ, $\epsilon_k = \mathrm{v}_F(|\mathrm{k}|\text{-}\mathrm{k}_F)$ l'énergie cinétique d'un électron libre linéarisée autour de $\pm\mathrm{k}_F$ le vecteur de Fermi, v_F la vitesse de Fermi, $\Delta(\varphi) = |\Delta| exp(i\varphi)$ le paramètre d'ordre et $\overrightarrow{Q} = 2\overrightarrow{k_F}$ le vecteur de nesting. On peut alors diagonalier l'hamiltonien tout comme pour la théorie BCS de la supraconductivité (voir [76] p.59 pour des indications sur les différentes étapes du calcul). On introduit les opérateurs [81, 79] :

$$\alpha_{k\sigma} = v_k \; a^+_{k\sigma} + u_k e^{-i\varphi} a^+_{k-Q\sigma} \tag{1.11}$$

$$\beta_{k\sigma} = u_k \; a_{k\sigma} - v_k e^{-i\varphi} a_{k-Q\sigma} \tag{1.12}$$

L'hamiltonien est alors de la forme :

$$\mathcal{H} \simeq \sum_{k>0,\sigma} E(k)(\alpha^+_{k\sigma}\alpha_{k\sigma} + \beta^+_{k\sigma}\beta_{k\sigma}) \tag{1.13}$$

avec

$$E(k) = sgn(k - k_F)\sqrt{\Delta^2 + (\frac{\epsilon_k - \epsilon_{k+Q}}{2})^2} \tag{1.14}$$

$$u_k^2 = \frac{1}{2}(1 + \frac{\sqrt{E(k)^2 - \Delta^2}}{E(k)}) \tag{1.15}$$

$$v_k^2 = \frac{1}{2}(1 - \frac{\sqrt{E(k)^2 - \Delta^2}}{E(k)}) \tag{1.16}$$

On démontre alors que le fondamental du système est :

$$|0) = \prod_{k>0} \alpha_{k\sigma}|0\rangle = \prod_{k>0}(v_k\ a^+_{k\sigma} + u_k e^{-i\varphi} a^+_{k-Q\sigma})|0\rangle \tag{1.17}$$

Ce sont ces électrons qui forment le condensat avec sa densité de charge modulée. Lorsque l'on développe $|0)$, le fondamental apparaît comme la superposition quantique d'un état a) avec une probabilité v_k^2 où l'état k est occupé par un électron alors que l'état k-Q est vide avec un état b) de probabilité u_k^2 où l'état k-Q est occupé par un électron alors que l'état k est vide. Autrement dit, c'est une superposition de la paire electron(k)/trou(k-Q), avec la paire electron(k-Q)/trou(k) ceci pour k aussi bien au-dessus qu'au-dessous du niveau de Fermi. Tout comme les paires de Cooper dans les supraconducteurs existent aussi bien pour k au-dessus qu'au-dessous du niveau de Fermi avec un probabilté v_k^2. En calculant explicitement les u_k et les v_k on constate que dans cette superposition quantique de paires électron/trou, c'est toujours la paire où l'état occupé par l'électron de vecteur d'onde plus petit que k_F en valeur absolue qui est la plus probable (*i.e.* k<k_F ou k-Q>-k_F).

De plus, comme dans la supraconductivité où il existe des états excités (*i.e.* non condensés) d'énergie $E(k) > \Delta$ (alors que dans l'état normal l'énergie des excitations peut-être aussi petite que l'on veut, *i.e.* il n'y a pas de gap d'excitation), que l'on nomme des bogolons, les ODC ont deux types d'état excité :

$$\beta^+_{k\sigma}|0) = e^{i\varphi} a^+_{k\sigma} a^+_{k-Q\sigma} \prod_{k'>0, k'\neq k} \alpha_{k'\sigma}|0\rangle \tag{1.18}$$

qui brise une paire électron/trou pour la remplacer par une paire électron/électron. Ces excitations appartiennent à la catégorie que Brazovskii [9] baptise porteurs intrinsèques qui comportent également les poches d'électrons non appariés à cause du nesting imparfait. Ils ont en commun d'être des électrons n'appartenant pas au condensat mais néanmoins sensibles à l'interaction avec le paramètre d'ordre. La dynamique de ces porteurs n'est pas exactement identique à celle des électrons normaux. Néanmoins, à l'aide d'une transformation chirale, il est possible de se ramener à un hamiltonien équivalent à celui des électrons normaux à une constante près ($\Delta\sigma_1$ où σ_1 est une matrice de Pauli), moyennant la définition d'un champ électrique effectif. Ce champ effectif comprend le champ électrique usuel et un terme proportionnel à $\partial^2\varphi/\partial x^2$.

L'autre excitation des ODC est :

$$\alpha^+_{k\sigma}|0) = \prod_{k'>0, k'\neq k} \alpha_{k'\sigma}|0\rangle \tag{1.19}$$

qui retire une paire électron/trou et laisse deux trous à la place. Cette excitation (mise à part sa charge) est assez proche des porteurs intrinsèques.

Comme toutes les bandes de conduction ne participent pas à l'onde haute température pour $NbSe_3$, il existe alors une autre variété de porteurs dit extrinsèques, toujours selon Brazovskii, auxquels on peut rajouter les électrons précédents ayant un vecteur d'onde très éloigné de $\pm k_F$. Ces porteurs se comportent totalement comme des électrons normaux.

Il existe une dernière catégorie de transport de charges liée aux singularités du paramètre d'ordre. Ces singularités apparaissent lorsque le condensat est soumis à une contrainte trop importante. En effet, on peut assimiler le condensat à un cristal électronique qui crée des dislocations pour libérer les contraintes qu'il subit. Le paramètre d'ordre s'annule alors sur une distance ξ tout comme pour les vortex dans les supraconducteurs. Comme cette dislocation contient des électrons normaux, on a un transport de charges lorsqu'elle se déplace. Cette catégorie comprend les solitons de phase et d'amplitude. On voit ici qu'il y a donc un autre gap d'excitation du système, lié à l'énergie de nucléation de ces dislocations. Ce dernier gap est plus petit que le gap provenant du paramètre d'ordre.

1.5.2 Injection de porteurs d'énergie plus petite que le gap

Lorsqu'une tension d'amplitude inférieure au gap est appliquée aux bornes d'un échantillon à ODC, les porteurs provenant des électrodes normales et qui tentent de pénétrer dans l'échantillon, peuvent évidemment devenir des porteurs extrinsèques mais ne peuvent devenir des porteurs intrinsèques car il n'y a pas d'états disponibles à cause du gap dans les énergies d'excitation. En revanche, il est théoriquement possible, en s'inspirant de la réflexion d'Andreev, que des électrons se convertissent en paire électron/trou en réfléchissant un électron. Néanmoins, il subsiste une controverse quand aux détails du mécanisme [3, 64, 30].

En effet, considérons par exemple un électron de vecteur d'onde $k_F+\delta k$, d'énergie ϵ_k, venant de l'electrode normale et se présentant à l'interface normal/ODC. Supposons en plus que le paramètre d'ordre $\Delta(x)$ passe continûment de $\Delta(x=0)=0$ à $\Delta(x=\xi)=\Delta$ où Δ est la valeur du gap dans le bulk. L'électron peut alors pénétrer jusqu'à une distance $x_0 < \xi$ où $\Delta(x=x_0)=\epsilon_k$ car il existe entre x=0 et x=x_0 des états excités d'énergie ϵ_k. Ces états sont dans ce cas du type β et leur fonction d'onde est $\psi_{k'}(x) = u_{k'}\, e^{ik'x} - v_{k'} e^{-i\varphi} e^{i(k'-Q)x}$ tel que E(k') $= \epsilon_k$ en prenant pour E(k') la relation 1.14 avec la valeur du paramètre d'ordre au point considéré. Ainsi, en x $= 0$ où $\Delta = 0$, on doit avoir $\epsilon_k = E(k') = \sqrt{(\frac{\epsilon_{k'} - \epsilon_{k'-Q}}{2})^2}$. On voit que le vecteur d'onde de l'excitation peut prendre deux valeurs :

- soit k' $=$ k_F $+$ δk, ce qui donne $u^2_{k'} = 1$ et $v^2_{k'} = 0$. La fonction d'onde est alors $\psi_{k'}(x) = e^{ik'x} = e^{i(k_F+\delta k)x}$.

– soit k' = k_F - δk, ce qui donne $u^2_{k'} = 0$ et $v^2_{k'} = 1$. La fonction d'onde est alors $\psi_{k'}(x) = e^{i(k'-Q)x} = e^{-i(k_F+\delta k)x}$

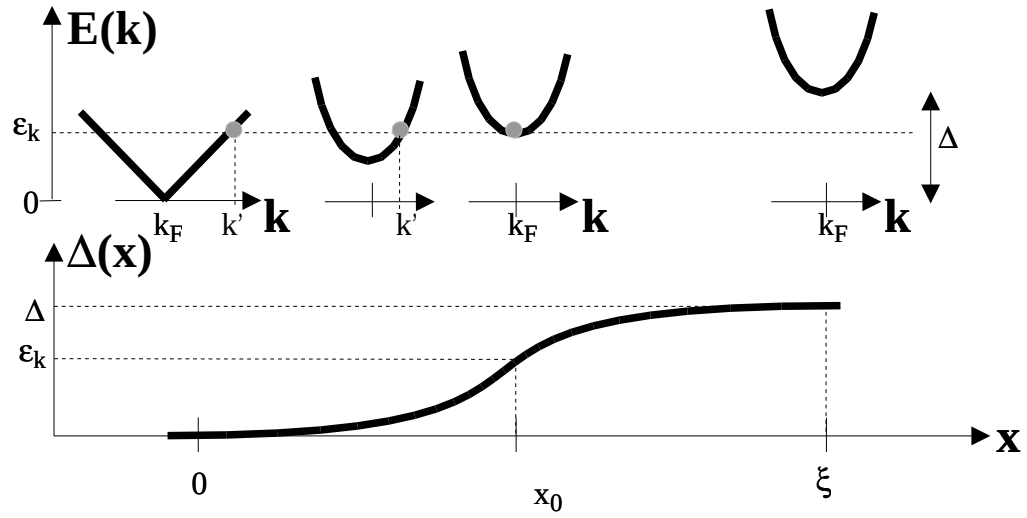


FIG. 1.9: Schéma du processus de réflexion d'Andreev [60].

Les conditions aux limites avec la fonction d'onde incidente, nous imposent k' = k_F + δk. On voit alors figure 1.9 que k' diminue au fur et à mesure que l'excitation pénètre plus profondément dans la zone entre 0 et x_0. L'excitation en interagissant avec le paramètre d'ordre a donc son vecteur d'onde qui est défléchi à énergie constante de la même manière qu'un électron est dévié lorsqu'il est soumis à un champ magnétique. Arrivé en x=x_0, on a k' = k_F et l'excitation ne peut pénétrer plus loin à cause du gap. De plus sa vitesse de groupe v = $\frac{1}{\hbar}\nabla_k E(k)$ s'annule alors qu'elle était positive avant et $u^2_{k'} = 1/2$ et $v^2_{k'} = 1/2$. C'est à dire que sous l'effet du condensat, l'excitation est maintenant la superposition équiprobable d'un électron de vecteur d'onde k_F et d'un électron de vecteur d'onde -k_F. Ensuite, si l'on poursuit l'analogie avec la réflexion d'Andreev on aurait qu'en x=x_0, $\frac{dk'}{dt} < 0$, donc k' continue de diminuer. La vitesse de groupe de l'excitation est alors négative et l'excitation retourne vers x = 0 par le même processus. En x = 0, on aboutit cette fois à k' = k_F - δk, on a donc un électron rétroréfléchi de vecteur d'onde (-k_F - δk). Ceci signifierait que cette réflexion est indistinguable de la réflexion ordinaire. Aussi Rejaei *et al.* [64] préfèrent considérer que l'électron qui repart a un vecteur d'onde légèrement différent de celui de l'onde incidente. Ainsi, contrairement à la réflexion ordinaire il y aurait un transport de courant vers le condensat car l'électron incident et l'électron réfléchi ne transportent pas le même courant même si leur charge est identique. On voit qu'il faut que l'ODC soit déjà dépiégée (soit localement par des inhomogénéités du type phase slip, soit totalement) pour que ce phénomène de réflexion d'Andreev ait lieu. On peut noter que comme pour la réflexion d'Andreev dans les supraconducteurs, il faut qu'il n'y ait aucune barrière de potentiel à l'interface pour que la réflexion soit optimum.

1.5.3 Injection de porteurs d'énergie plus grande que le gap

Dans les expériences de transport usuelles, les porteurs ont majoritairement une énergie plus grande que le gap. Les électrons n'ont alors aucun mal à pénétrer dans l'échantillon mais pour se convertir en ODC, il doivent faire appel à un autre mécanisme que la réflexion d'Andreev. Expérimentalement, on constate que lorsque l'onde se met en mouvement :

- Le courant de l'onde est plus faible proche des électrodes qu'au centre de l'échantillon (voir figure 1.10 et ref. [37]). Cette expérience a été effectuée à l'aide de plusieurs petites électrodes le long de l'échantillon. Le courant est injecté aux extrémités de l'échantillon et l'on mesure la tension localement entre deux petites électrodes côte à côte. Connaissant cette tension V, on peut en déduire le courant normal I_N circulant dans cette zone par $I_N = V/R_N$ où R_N est la résistance de cette portion d'échantillon avant le dépiégeage de l'onde (on considère donc qu'il n'y a pas d'interaction entre l'onde en mouvement et les porteurs normaux qui puisse faire varier la résistance de ces porteurs). Sachant que le courant total I_{tot} est conservé tout le long de l'échantillon on peut en déduire le courant d'onde de densité de charge $I_{CDW} = I_{tot}$ - I_N. Le courant d'ODC varie sur des distances de l'ordre de 100 μm des électrodes à 90 K, mais cette distance peut-être beaucoup plus faible à plus haute température. Le rapport entre le courant normal et le courant de l'onde est fixe au coeur de l'échantillon. Une variation spatiale du courant de l'onde signifie qu'il y a une variation du nombre de porteurs car $R \propto d\rho_{ODC}/dt = \nabla J_{ODC}$. On appelle R le taux de nucléation de porteurs condensés.
- La période spatiale de l'onde est plus grande, proche de l'electrode où les électrons sont injectés, plus petite à l'autre électrode et inchangée au centre de l'échantillon (voir figure 1.11, ref. [65] et chapitre 5). Cette expérience a été effectuée à l'ESRF. L'onde est alors plus dense (*i.e.* compressée) là où les électrons sont retirés. Donc, son potentiel chimique est plus élevé à cette électrode et vice versa à l'autre électrode. Cet effet peut être observé jusqu'à plusieurs centaines de microns de l'électrode à 90 K.

De ceci, on déduit que le processus de conversion est difficile et que les électrons en excès au niveau des électrodes pénètrent loin dans l'échantillon avant de relaxer en ODC et d'équilibrer leur potentiel chimique avec celui de l'onde. On peut concevoir deux mécanismes de relaxation :

- Les électrons excités peuvent relaxer par collision avec des phonons par le même mécanisme qui conduit au phénomène de "charge imbalance" dans les jonctions N/S [77]. En effet, quand on injecte des électrons dans un supraconducteur une des branches

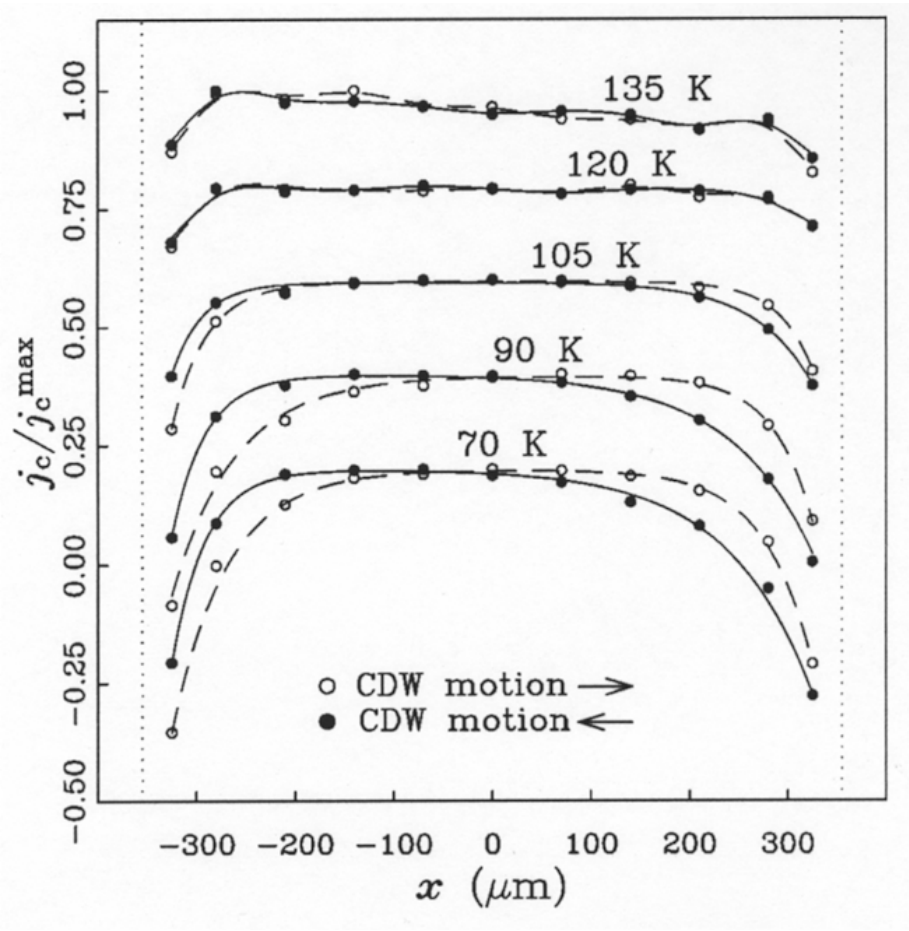
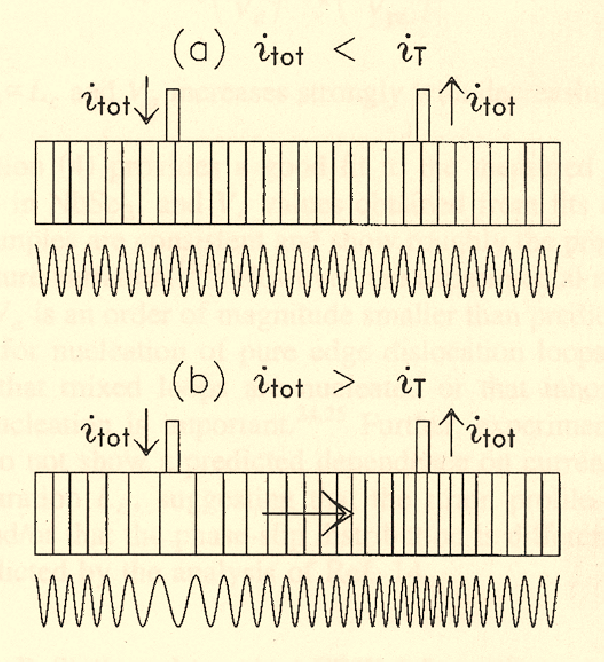


FIG. 1.10: Profil du courant d'ODC en fonction de la position pour un échantillon de $NbSe_3$ à différentes températures.

d'excitation (les bogolons vu au paragraphe 1.5.1) se peuple plus que l'autre. Ce déséquilibre entre les branches provoquent un déséquilibre de charges au sein du supraconducteur sur une distance $\lambda = \sqrt{l_e v_F \tau_Q}$ [60] (où l_e est le libre parcours moyen électronique, v_F la vitesse de Fermi et τ_Q le temps de relaxation entre les branches inversement proportionnel au gap). Ensuite, les excitations se recombinent en paires de Cooper sur un temps τ_R mesurable par deux jonctions tunnels [23].

– Les électrons peuvent se convertir en ODC par l'intermédiaire de boucles de dislocation du réseau électronique. Dans ce modèle, sur lequel s'appuie Brazovskii [10], les électrons non condensés passent par un état intermédiaire avant de se convertir en ODC. Le principe de ce mécanisme s'inspire de la notion de phase slip dans les fils supra 1D (voir ref. [76] p.288). Lorsqu'un courant traverse ce fil, le paramètre d'ordre est de la forme $|\Delta|e^{iqr}$, où q est proportionnel au courant supraconducteur et r est la position le long du fil (voir [19] p. 144). Si, de plus, on applique une tension aux bornes du supraconducteur, la phase du paramètre d'ordre augmente selon la relation Josephson : $\frac{d\varphi}{dt} = 2eV/\hbar$. On peut voir cela comme un ressort fixé à un bout



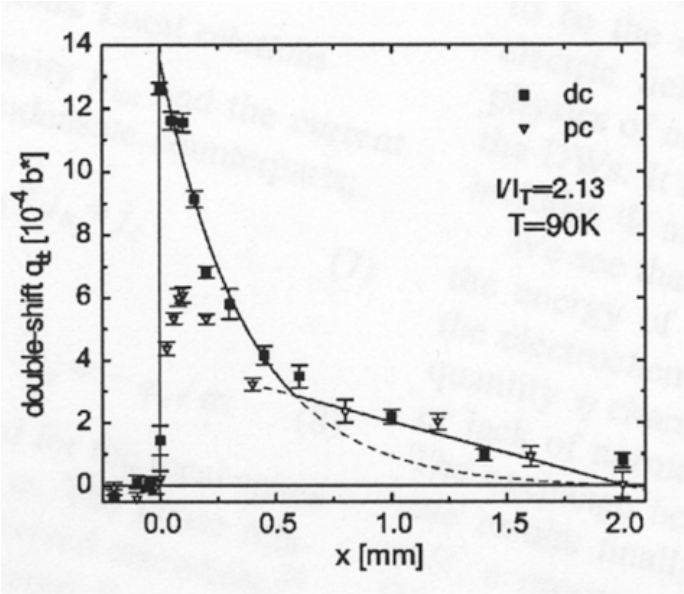


FIG. 1.11: A gauche : schéma représentant les déformations de l'onde de densité de charge dues à l'injection des porteurs. A droite : variation du déplacement du pic satellite dans $NbSe_3$ (c'est à dire de la différence entre sa position avec courant et celle sans courant) le long de l'échantillon et pour un courant égal à environ deux fois le champ seuil.

et où l'on rajoute continûment des spires à l'autre bout. On a alors une augmentation du gradient de la phase du paramètre d'ordre et donc une augmentation du courant transporté par le condensat. Or, ce courant ne peut dépasser une valeur critique I_C au delà de laquelle les paires de Cooper se brisent et l'échantillon redevient normal de résistance R_N. Mais, cet état n'est stable que si la tension V appliquée est suffisamment élevée. En effet si $V < R_N I_C$, alors le courant normal est inférieur au courant critique et donc les électrons redeviennent supraconducteurs. Le système n'est stable ni dans l'état supraconducteur, ni dans l'état normal. C'est pourquoi le système à recours au phase slip qui consiste à faire disparaître un tour de phase en annulant localement la paramètre d'ordre, ce qui permet de ne pas avoir de discontinuité de la phase. Les contraintes sur la phase sont ainsi libérées en ne rendant normal qu'une petite partie de l'échantillon pendant un bref instant. Dans les ODC, lorsque l'onde est en mouvement on a $\frac{d\varphi}{dt} \propto v_{CDW} \neq 0$ et on a une accumulation de contraintes sur la phase d'après les mesures RX ([65] et figure 1.11). En effet, un déplacement du pic satellite signifie que l'onde s'écarte de la périodicité spatiale en $2k_F$, ce qui implique, d'après l'expression de la densité de charge (équation 1.3), que $\nabla\varphi \neq 0$. Donc, on peut concevoir que l'onde relaxe les contraintes sur sa phase en enlevant un plan d'onde lors de chaque phase slip (voir figure 1.12 et le chapitre 10 de la ref. [22]).

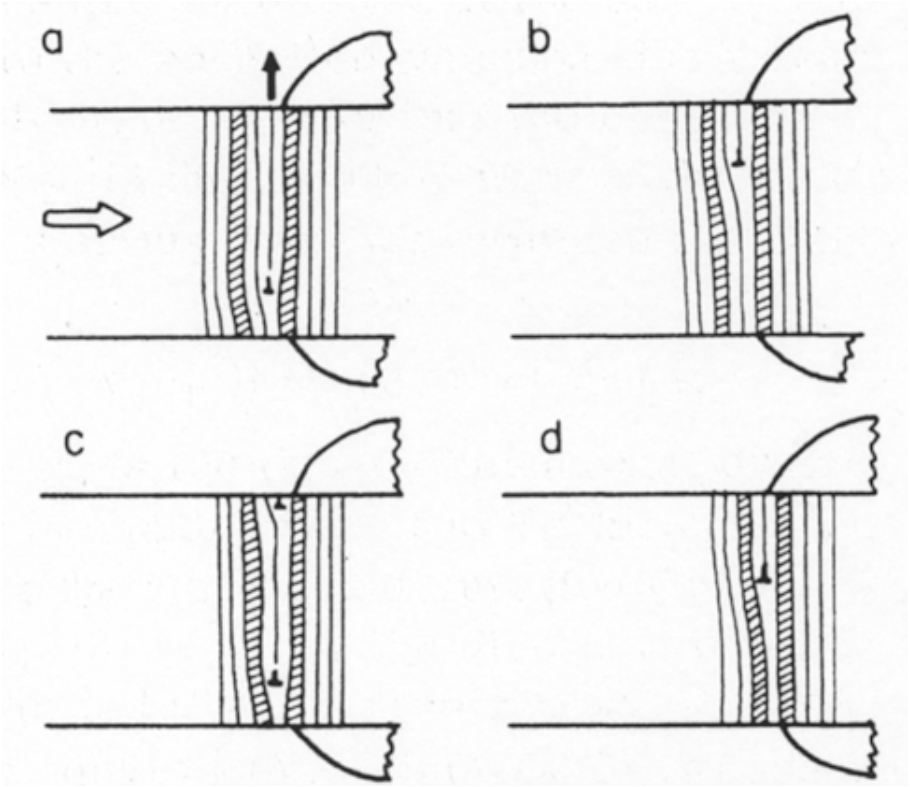


FIG. 1.12: Libération des contraintes sur la phase de l'ODC par phase slip [57]. Une dislocation est nucléée en un point d'un front d'onde puis se propage jusqu'à la surface de l'échantillon. La phase tourne ainsi de 2π.

Ce mécanisme a également été proposé pour expliquer l'existence du narrow band noise. Cependant, l'explication reposait sur l'idée qu'il n'y a du phase slip qu'en un point proche des électrodes, afin d'avoir un signal cohérent. Or, il s'avère que pour expliquer les contraintes sur l'onde visible sur de longues distances, il faut que la zone de nucléation de phase slip soit elle même étendue.

Dans le cadre de son modèle, Brazovskii [10] peut estimer un temps de conversion de l'ordre de la microseconde, ainsi qu'une longueur de conversion en accord avec les expériences aux rayons X [65]. Néanmoins, il n'a encore jamais été possible de clairement identifier expérimentalement ces dislocations. De plus, on peut noter que dans le cas du modèle inspiré de la jonction N/S, le phase slip n'est pas nécessaire car il y a libération continue des contraintes au niveau des électrodes (puisqu'aux électrodes, le paramètre d'ordre est nul) tout en ayant une conversion qui s'effectue à l'intérieur de l'échantillon. Enfin, les problèmes de conversion commencent à être explorés sur des échelles submicroniques et ces études laisseraient apparaître que de nouveaux phénomènes sont en jeu [85, 41, 33].

2

Fabrication des échantillons

Une grande partie de ce travail de thèse a consisté à mettre au point un procédé de réalisation d'échantillons de taille de l'ordre du micron. Nous avons profité des outils de microfabrication et de la salle blanche de classe 5000 du CRTBT (la classe est le nombre de poussières d'un diamètre supérieur à 0,5 micron par pied^3 d'air). Ces outils sont principalement un MEB (microscope électronique à balayage), un bâti de gravure (RIE), des évaporateurs et un masqueur optique. Au cours de ce chapitre, nous allons décrire la fonction de chaque outil et montrer en quoi ils nous ont été utiles pour chaque étape du procédé de fabrication. Les détails exacts du process sont reportés en Appendice A.1. En fin de chapitre, nous présentons une technique alternative de microfabrication par focus ion beam (FIB).

2.1 Obtention d'un échantillon à ODC apte à la mésoscopie

De tous les matériaux à ODC, $NbSe_3$ est sûrement le plus prometteur pour effectuer des expériences de mésoscopie : ses propriétés de transport dans des échantillons macroscopiques sont bien connues, ses champs de dépiégeage sont faibles ($E_{th} < 1$ V/cm) et par dessus tout, sa longueur de cohérence de phase est élevée ($L_\varphi > 1$ μm selon les mesures de largeur de pics satellites par diffraction X [14]). Ainsi, des échantillons mésoscopiques ont déjà été réalisés au CRTBT [33] et parfois en collaboration avec un laboratoire à Delft au Pays-Bas [41, 42].

En revanche, $NbSe_3$ a le défaut, commun à tous ces composés de basse dimensionnalités, de n'être synthétisable que sous forme de minces rubans enchevêtrés par CVT (chemical vapor transport). La croissance prend naissance en différents points et se poursuit le long de l'axe des chaînes du cristal et assez peu dans les directions transverses. Typiquement, ces échantillons sont longs de plusieurs mm et de section relativement constante de l'ordre de 30 μm par 2μm. Or, la plupart des process de microfabrication (comme celui des

jonctions Josephson en particulier) dépose leur matériau en couche mince, par exemple, par épitaxie ou par évaporation Joule et non par CVT. Aussi, le groupe de Delft a-t-il essayé de réaliser des couches minces épitaxiées de matériaux à ODC (bronze bleu), mais ils ne parvinrent pas à vaincre cette croissance privilégiée le long des chaînes et n'obtinrent que des îlots polycristallins pour l'instant inexploitables [43]. Ici, nous avons pris le parti de manipuler directement les échantillons tels qu'ils sont et d'adapter les différents process de salle blanche à la réalisation de microstructures de monocristaux.

2.1.1 Sélection de l'échantillon

Les échantillons sont extraits de leur ampoule de croissance et inspectés sous microscope. Il faut que le ruban ait une section la plus uniforme possible, sans marche et que sa largeur soit plus grande que celle du motif à lithographier (ici 40 μm). Son épaisseur doit être inférieure à 0,5 μm sinon la lithographie devient assez difficile (voir paragraphe 2.2.1) et la résolution du motif est beaucoup plus faible (voir paragraphe 2.2.3). Pour ce faire, on mesure sa résistance longitudinale en deux fils à l'aide d'un multimètre et de deux morceaux d'Indium écrasés à chaque extrémité du ruban. En mesurant au microscope la longueur de l'échantillon entre les deux contacts d'Indium et en considérant que la résistivité de $NbSe_3$ à l'ambiante est de l'ordre de 250 $\mu\Omega$·cm, on peut estimer l'épaisseur de l'échantillon. Cependant, les échantillons d'épaisseur inférieure à 0,5 μm étant extrêmement rares, nous nous sommes fixés comme limite maximum une épaisseur de 1,5 μm que l'on réduira ensuite par gravure ionique.

Une fois cette phase de sélection achevée (ce qui peut prendre plusieurs heures/jours pour obtenir tout au plus trois échantillons convenables sur plusieurs centaines testés), l'échantillon est placé sur un substrat de saphir d'environ 0,5 cm par 1 cm. Le ruban doit être posé à plat sur le saphir. Puis, on fixe l'échantillon en posant une goutte de collodion aux deux bouts du ruban (figure 2.1). La véritable épaisseur de l'échantillon est alors mesurée précisément par un profilomètre. Cette mesure consiste à déplacer dans le sens de la largeur du ruban une pointe en contact direct avec le substrat. La pointe de diamètre 12,5 μm est en diamant et exerce sur l'échantillon une force de 150 μN environ (15 mg). L'échelle maximum en épaisseur est de 100μm et la résolution de la plus petite échelle (1000 Å) est de 10 Å. La vitesse de defilement va de 100 à 10 μm par seconde.

La figure 2.2 illustre un profil typique obtenu sur ce profilomètre pour un échantillon de section rectangulaire. Il faut prendre garde au fait que si l'échantillon est mal posé

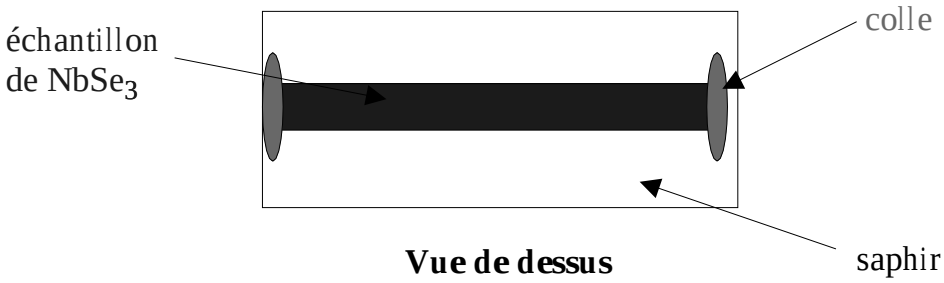


FIG. 2.1: Schéma d'un échantillon de $NbSe_3$ posé sur un substrat de saphir et collé aux deux bouts par du collodion.

sur le saphir, la mesure est impossible et la pointe peut même déplacer, déformer ou détruire l'échantillon. Finalement, l'échantillon est observé avec un microscope optique à haute résolution en salle blanche afin de localiser des éventuelles zones endommagées où ne pourra se faire la lithographie.

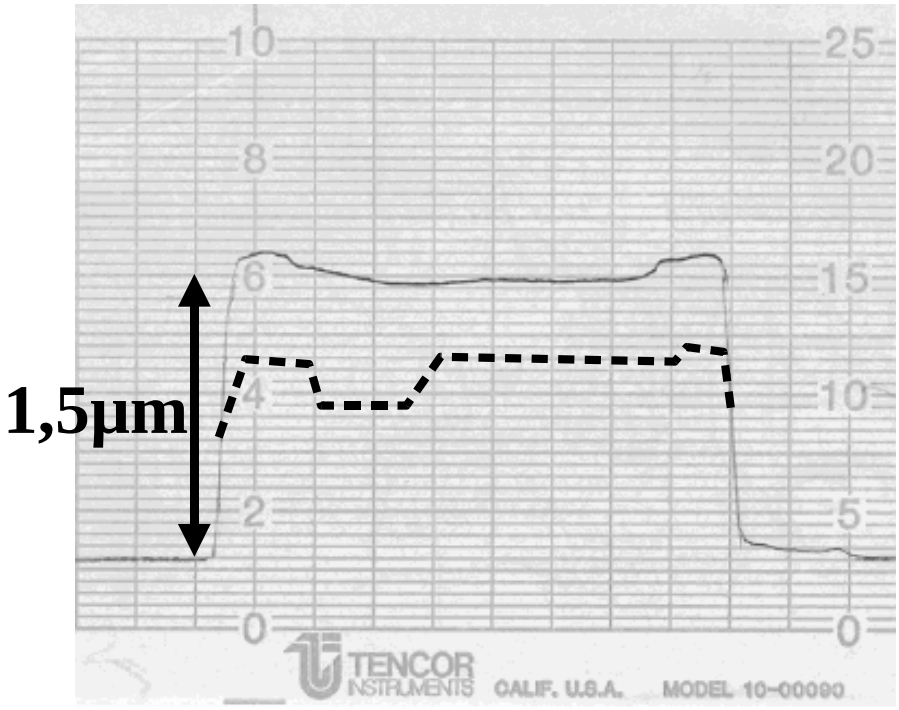


FIG. 2.2: Exemple de graphe donné par le profilomètre du CRTBT. En trait plein : épaisseur de l'échantillon en fonction de la position le long de la direction cristallographique $\vec{c}$. En pointillé : profil du même échantillon après quelques minutes de RIE.

2.1.2 Amincissement de l'échantillon

L'échantillon doit maintenant être aminci afin qu'il ait une épaisseur inférieure à 0,5 μm. On distingue essentiellement deux types de gravure : la gravure sèche et la gravure humide. La gravure humide consiste à plonger l'échantillon à amincir dans une solution d'attaque chimique. Cette technique a l'inconvénient de graver de manière isotrope alors que l'on ne veut graver que dans le sens de l'épaisseur. De plus la colle est gravée plus facilement que l'échantillon, il y a alors un grand risque que l'échantillon se décolle sous l'effet de l'agitation du liquide (comme nous le verrons au paragraphe 2.2.3 dans le cas de la gravure de l'Aluminium). L'échantillon est alors irrécupérable. C'est pourquoi nous utilisons le bâti de gravure sèche RIE (reactive ion etching). La gravure sèche est aussi appelée gravure assistée par plasma car l'échantillon est gravé par l'action mécanique et chimique d'un plasma : des gaz sont introduits dans une chambre à basse pression. Ils sont ionisés sous l'effet d'une excitation électromagnétique et forment un plasma (i.e. une phase où les électrons et les ions oscillent de manière distincte). L'échantillon peut être placé sur une électrode (par exemple la cathode qui a servi à créer l'excitation électromagnétique) qui attire les ions chargés électriquement. Il y a donc une action mécanique des ions qui bombardent l'échantillon. De plus, il peut y avoir des espèces chimiquement actives dans le plasma, qui vont interagir avec le matériau de l'échantillon pour former un produit volatil. Il y a donc deux mécanismes de gravure qui peuvent entrer en jeu dans la gravure sèche : chimique et mécanique. En déposant un masque de gravure à la surface de l'échantillon de manière à protéger localement la surface de l'action du plasma, on peut graver des motifs. Plusieurs réacteurs de gravure peuvent être utilisés : les réacteurs à faisceaux d'ions, les réacteurs diodes et les réacteurs à plasma haute densité. Au laboratoire, nous disposons d'un réacteur diode RIE (Reactive Ion Etching), le plasma est créé entre deux électrodes par une excitation radiofréquence, et l'échantillon est placé sur la cathode. De nombreuses variantes existent : réacteur triode, magnétron...

Ainsi, dans ce bâti de RIE, le substrat est posé à plat sous vide, le pilonnage constant des ions tend à plaquer l'échantillon sur le substrat et non à le décoller. De plus, l'intérêt de la gravure sèche repose principalement dans ses capacités à réaliser des gravures fortement anisotropes. Une gravure purement chimique aboutit à un profile d'attaque isotrope. En effet, les espèces neutres réactives du plasma ont une incidence aléatoire et toutes les surfaces sont exposées. C'est l'action de la gravure mécanique des ions qui peut permettre d'obtenir une gravure anisotrope. Les ions bombardent l'échantillon à incidence normale et accroissent fortement la vitesse de gravure verticale (figure 2.3). Donc, la colle entre

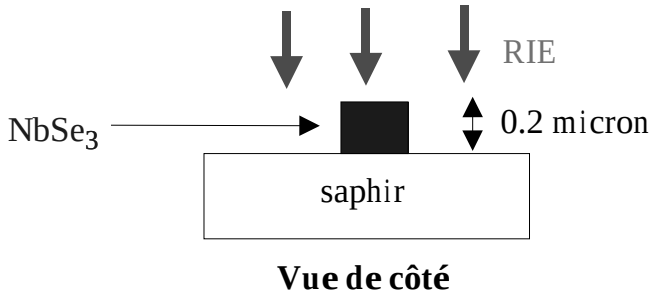


FIG. 2.3: Schéma du processus de gravure anisotrope par RIE. L'échantillon est aminci jusqu'à 0,2 μm et le saphir n'est pas affecté par la gravure.

l'échantillon et le saphir est très peu attaquée. Il n'y a plus de risque de décollement. Un autre intérêt de l'anisotropie de la gravure RIE sera expliqué plus tard au paragraphe 2.2.3 pour la gravure des motifs. Le gaz utilisé pour la gravure de $NbSe_3$ est le SF_6. La réaction chimique est alors la suivante :

$$NbSe_3 + SF_6 \rightarrow NbS + F_2 + ...$$

Il est préférable que tous ou la majorité des produits de la réactions soient gazeux afin qu'ils soient évacués par les pompes. Sinon, ils se redéposent sur l'échantillon et les parois internes du bâti ce qui conduit à des pollutions, des pertes d'efficacité de la gravure, voire d'énormes inhomogénéités spatiales de gravure de l'échantillon. En effet, la RIE a pour principal inconvénient (contrairement à la gravure humide) de graver de manière assez inhomogène et aléatoire nos échantillons. Partant d'une épaisseur constante tout le long de l'échantillon, on peut se retrouver avec de grandes différences d'épaisseur en quelques minutes de gravure comme l'illustre la figure 2.2. La vitesse moyenne de gravure pour $NbSe_3$ est de l'ordre de 0,2 $\mu m/$min mais il n'est pas rare que l'épaisseur de l'échantillon ne varie pas pendant les deux premières minutes de gravure, puis diminue brutalement d'un μm en une minute. Aucune explication fiable de ce phénomène n'a pu être fournie (inhomogénéité intrinsèque du plasma RIE, mince mais robuste couche d'oxyde à la surface de l'échantillon...). Il est donc important de contrôler tout au long du processus de gravure l'homogénéité de l'amincissement. Malheureusement, le système de mesure *in situ* de l'épaisseur gravée ne peut être utilisé dans notre cas. En effet, l'épaisseur est mesurée par interférence laser mais il faut que la surface à graver soit semi-transparente et plus grande que le diamètre du spot (de l'ordre de 1 mm). Il nous faut alors stopper la gravure toutes les minutes voire toutes les quinze secondes lorsqu'on approche de l'épaisseur désirée, casser le vide du bâti, mesurer l'épaisseur de l'échantillon en différents points au

profilomètre, puis éventuellement poursuivre la gravure. Nous avons constaté que les effets d'inhomogénéité de gravure s'aggravent avec l'épaisseur à graver. Pour un échantillon plus épais que 1,5 μm, l'obtention d'un échantillon d'épaisseur inférieure à 0,5 μm devient assez hasardeuse. Il est à noter que la gravure d'échantillons quasi-unidimensionnels pose au départ des problèmes de principe car les liaisons entre chaînes de conduction sont de type Van Der Walls (*i.e.* faibles). On peut donc craindre que les réactifs de gravure (ion SF_6 par exemple) puissent pénétrer plus profondément que dans des échantillons ordinaires et graver en volume voire s'implanter au lieu de pulvériser la surface. Ceci est inhérent à tous types de gravure mais sûrement plus prononcé dans le cas de la gravure sèche.

2.1.3 Fixation de l'échantillon

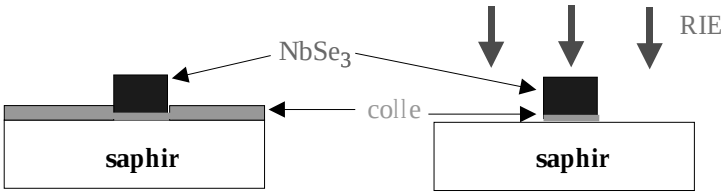


FIG. 2.4: Recollage (à gauche) et retrait de la colle superflue (à doite) par RIE.

Pour la suite du processus, il va être crucial que l'échantillon soit extrêmement bien fixé au substrat. Or, le collodion a été partiellement attaqué par la RIE, il ne maintient l'échantillon que par en-dessous aux deux bouts. Nous avons fait une recherche systématique d'une colle suffisamment fluide pour coller le dessous de l'échantillon par capillarité sur le saphir, résistante aux différentes solutions d'attaques chimiques utilisées en salle blanche et pouvant se retirer aisément par RIE (figure 2.4). Cette dernière condition est nécessaire pour retirer la colle qui a débordé au-dessus de l'échantillon. Or, il y a moyen, en remplaçant le gaz réactifs SF6 par l'O_2 injecté dans la RIE, de ne graver que les matériaux organiques (comme les colles et résines à condition que celles-ci ne soient pas trop dures ou ne se transforment pas en goudron sous l'effet de l'échauffement pendant la pulvérisation).

2.2 Première étape de lithographie

Notre but est de réaliser une microstructure de $NbSe_3$, c'est-à-dire , un circuit dont les fils soient en $NbSe_3$ et de taille micronique. Or, nous disposons pour le moment d'un ruban de $NbSe_3$. Nous pouvons, par exemple, placer sur l'échantillon un masque de la forme du

motif désiré, puis graver. Les zones masquées seront protégées pendant la gravure. Il suffira alors de retirer le masque pour n'avoir plus sur le substrat que le motif en $NbSe_3$.

2.2.1 Dessin du motif par lithographie électronique

On commence par déposer une couche uniforme de résine organique à la surface de l'échantillon. Ceci est réalisé à l'aide d'une tournette qui entraîne l'échantillon en rotation (la vitesse de rotation est comprise entre 1000 et 10 000 tours par minute). En versant quelques gouttes de résine sur l'échantillon, la force centrifuge permet de réaliser un film d'une épaisseur de quelques centaines de nanomètres. Les résines employées sont soit des résines optiques qui réagissent à la lumière (résines AZ, S1818), soit des résines électroniques qui réagissent au bombardement électronique. La résine que nous avons la plus largement employée est le Polyméthylméthacrylate (PMMA). Le PMMA est appelé résine positive, parce que les parties insolées sont fragilisées et deviennent plus sensibles à l'action d'un solvant, *i.e.* ce qui est insolé réagit comme en photographie alors que pour un négatif ce qui n'est pas insolé réagit. Il existe également des résines négatives pour lesquelles l'énergie du rayonnement provoque, au contraire, un pontage entre les polymères. La zone insolée est dans ce cas plus résistante aux solvants.

Ici, l'insolation se fait à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB). Le MEB du laboratoire est un stereoscan 240 Cambridge Instruments pouvant accélérer les électrons jusqu'à 30 kV. Les courants typiques d'insolation sont de l'ordre de 10 pA pour la meilleure résolution. On programme les coordonnées des points de l'échantillon à insoler, on fait la mise au point du faisceau électronique sur l'échantillon, on aligne le plus précisément possible l'axe du ruban avec les axes de déplacement du faisceau puis l'insolation est pilotée par ordinateur.

En pratique la résolution est limitée par :

- La taille des chaînes du polymère de la résine et les processus chimiques et mécaniques mis en jeu. Des études ont montré qu'on pouvait atteindre des largeurs de trait de 5 à 7 nm avec le PMMA en utilisant des ultrasons pendant le développement. Il y a toutefois des fluctuations de largeur de 3 nm.
- L'épaisseur de l'échantillon. Ceci est spécifique à nos échantillons. Il est important que l'échantillon soit mince et que la couche de résine soit épaisse, pour que le film soit uniforme. Sinon, la lithographie ne sera pas homogène et les motifs seront déformés et différents les uns des autres.

– Les collisions des électrons avec la résine. Les résines organiques ne sont sensibles qu'aux faibles énergies de l'ordre d'une dizaine d'électronvolts. Les électrons en provenance directe du faisceau ont une énergie bien supérieure, ce qui est indispensable pour avoir un faisceau convenablement convergent. Ce sont donc les électrons secondaires qui insolent la résine. La diffusion des électrons dans la résine et la rapidité avec laquelle ils perdent leur énergie influent sur la taille des motifs. Les électrons sont aussi rétrodiffusés par le substrat. Dans ce cas, ils peuvent agir loin du faisceau incident. La dose reçue en un point de l'échantillon dépend alors de la densité de motifs à proximité. Le rapprochement de deux motifs importants peut ainsi poser des problèmes délicats.

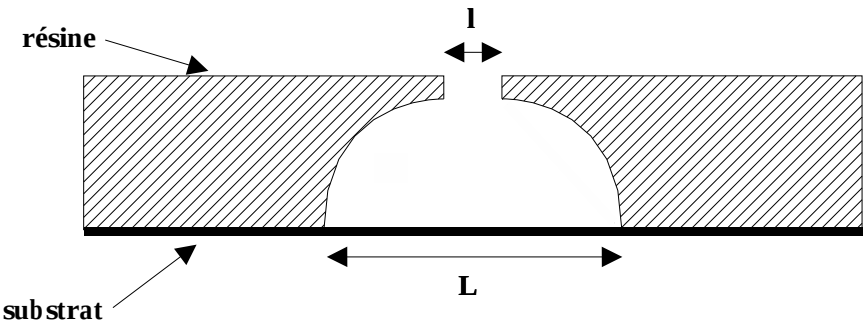


FIG. 2.5: Évasement d'une résine provoqué par la rétrodiffusion d'électrons d'un faisceau MEB. l : largeur du faisceau incident ; L : largeur réelle du motif.

Après insolation, l'échantillon est plongé dans un bain de révélation. Ce bain est constitué d'un solvant dilué de la résine. Le bain dissout celle-ci aux endroits les plus fragiles (c'est-à-dire les zones insolées pour les résines positives, ou sur les zones non insolées pour les résines négatives). Le temps de révélation dépend principalement de l'épaisseur de résine. Il doit être calculé précisément pour les petits motifs. Si le temps de révélation est trop court, il reste de la résine au fond du motif. Si le temps est trop long, le motif va grossir et être déformé. D'autant plus, que la rétrodiffusion provoque un évasement des motifs au moment de la révélation (voir figure 2.5).

Pour s'affranchir de la limitation provenant de la rétrodiffusion, il a été développé au CRTBT une technique dite tricouche (voir figure 2.6). On recouvre l'échantillon d'une couche épaisse de résine puis d'une couche très fine de Ge (ou de Si) et enfin d'une autre couche de résine. La couche de résine du dessus est insolée et subit la rétrodiffusion des électrons. On révèle, la couche du dessus est donc évasée, mais pas celle du dessous car la couche de Ge ne laisse pas passer le révélateur. On grave d'abord par RIE SF6 la partie de la fine couche de Ge non protégée par la couche de résine du dessus. Comme la gravure est anisotrope le Ge n'est gravé que sur une largeur l liée au faisceau (au lieu d'une largeur

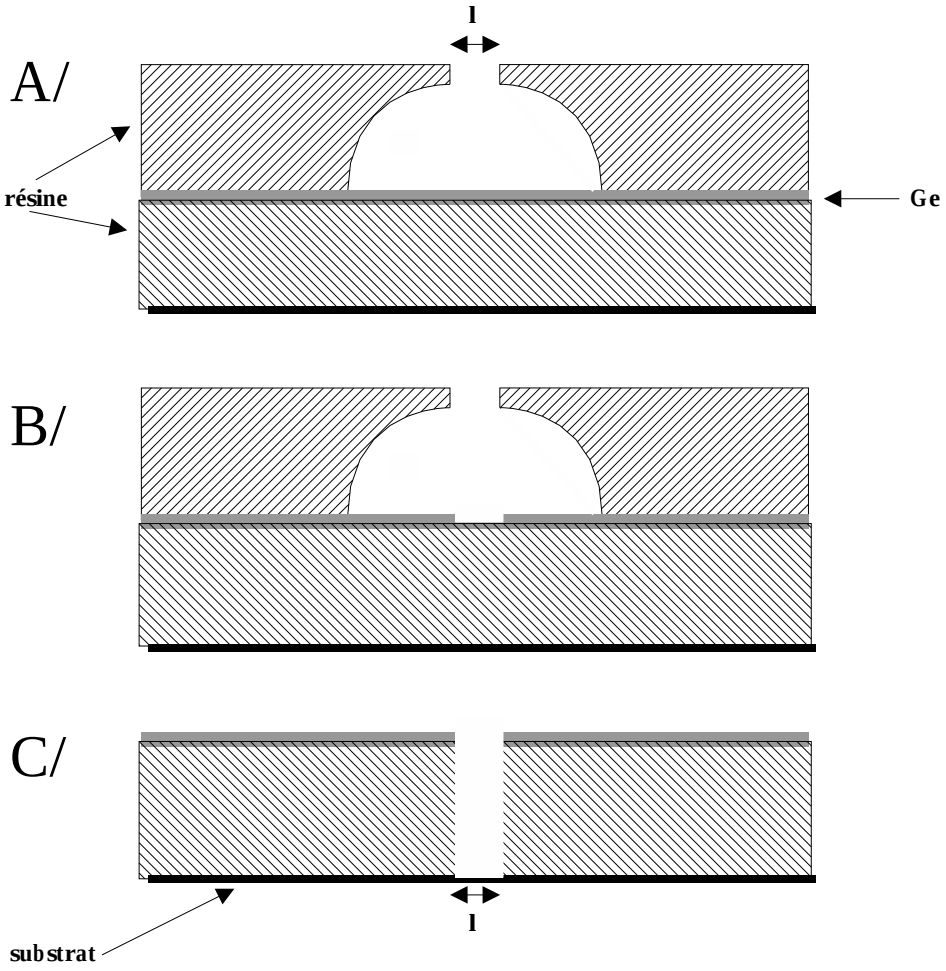


FIG. 2.6: Différentes étapes du tricouche : A/ Insolation de la couche du haut avec évasement, B/ Retrait du Ge par RIE SF_6, C/ Retrait de la couche de résine du bas par RIE O_2.

L liée à l'évasement), puis on retire la résine de la couche du dessous non protégée par le Ge par RIE O_2. La gravure étant, là aussi, anisotrope au niveau de l'échantillon ou du substrat le motif a bien une largeur l.

La couche de Ge a également pour intérêt d'être suffisamment conductrice pour permettre l'évacuation des charges. En effet, le saphir est un substrat isolant et l'insolation électronique consiste à amener des électrons sur le substrat. Si ces charges ne sont pas évacuées vers la masse, elles vont repousser ou dévier le faisceau d'électrons incidents et se décharger brutalement. On appelle cela l'effet de charges, qui a pour conséquence de déformer les motifs.

2.2.2 *Obtention du masque*

Une fine couche d'Al est ensuite déposée sur l'échantillon sous un vide de 10^{-6} mbar. Ce dépôt se fait dans un bâti contenant des creusets que l'on chauffe par effet Joule. Ce dépôt est isotrope, c'est pour cela qu'il est important de ne pas avoir d'évasement de la résine si on veut que le masque d'aluminium soit identique au motif lithographié. Nous avons choisi l'Al car il est assez peu sensible à la RIE. Il ne réagit pas chimiquement avec le SF_6 et la pulvérisation (*i.e.* l'attaque mécanique de la RIE) est, grosso-modo, d'autant plus faible que le numéro atomique du matériau est petit. C'est en partie pour cette raison que le saphir est insensible lui aussi à la RIE. On place ensuite l'échantillon dans un solvant qui dilue la résine non insolée. La résine part avec le métal déposé au dessus : c'est le lift-off. Seul reste sur l'échantillon le métal qui s'est déposé aux endroits sans résine, endroits qui correspondent aux motifs que l'on veut réaliser (voir figure 2.7).

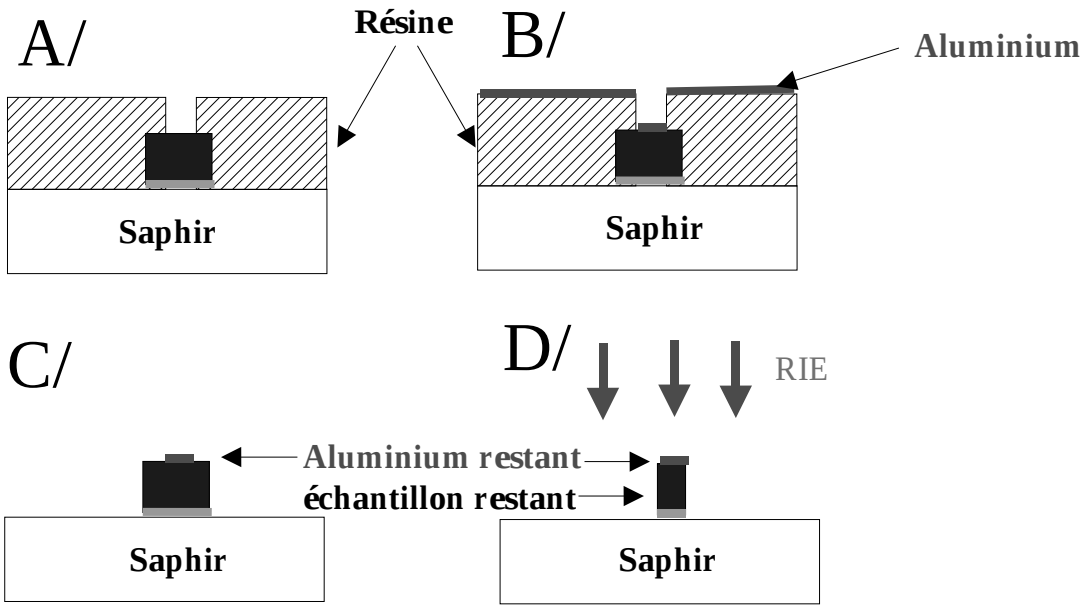


FIG. 2.7: Masquage de l'échantillon. A/ échantillon après développement. B/ échantillon après dépôt d'aluminium. C/ échantillon après lift-off. D/ échantillon après gravure.

2.2.3 *Obtention de la microstructure ou le supplice de Tantale*

L'échantillon est ensuite gravé par RIE SF_6. Les zones de $NbSe_3$ non protégées par l'aluminium disparaissent du saphir. Néanmoins, la gravure n'étant pas parfaitement anisotrope (*i.e.* parfaitement verticale), plus l'épaisseur de l'échantillon sera grande plus la largeur du motif sera réduite. En principe, pour une épaisseur d'échantillon de l'ordre de

0,2 μm, on peut espérer ne graver environ que 0,02 μm en largeur (car l'anisotropie est de l'ordre de 1/10). En pratique, compte tenu de l'inhomogénéité de gravure et de la fragilité d'un échantillon de cette épaisseur, il semble difficile d'obtenir des motifs moins larges que 500 nm ou des trous de diamètre inférieur à 250 nm. Dans le cas d'une gravure humide, les résolutions seraient nettement plus faibles du fait de l'isotropie de la gravure.

Le masque d'Al est ensuite retiré par gravure humide. Cette opération est la plus délicate de tout le process car l'échantillon n'est maintenu que par les restes de colle sous le motif de NbSe3 (de taille micronique) et la gravure de l'Al attaque aussi la colle. Les risques de décollement de l'échantillon sont de l'ordre de 50 %. La figure montre une microstructure parvenue saine et sauve jusqu'à cette étape du process.

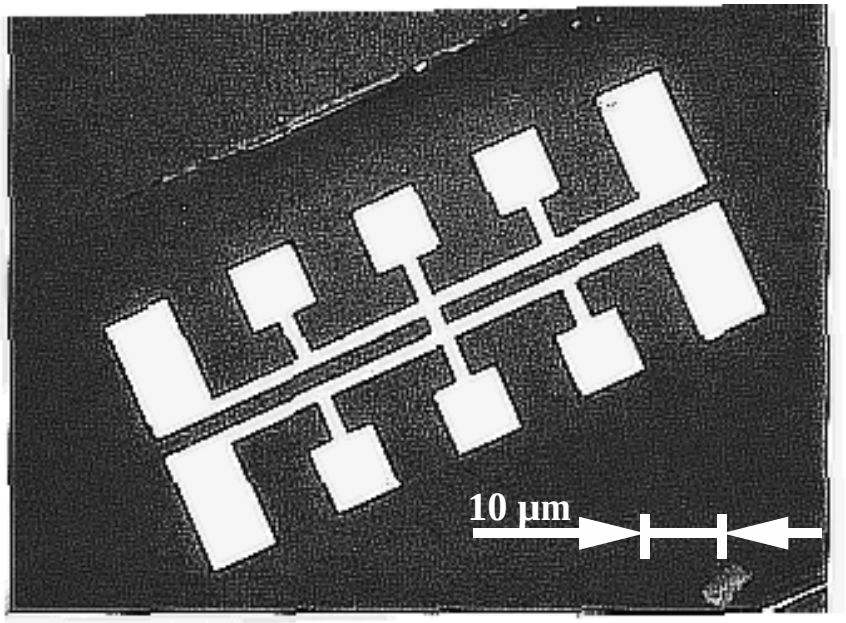


FIG. 2.8: Microstructure de $NbSe_3$ avec en blanc l'échantillon restant et en sombre le saphir. Il est possible de distinguer deux lignes blanches parallèles, résidus du ruban initial de $NbSe_3$

2.3 Seconde étape de lithographie

2.3.1 Évaporation de l'Au

Une fois le motif de $NbSe_3$ obtenu, il reste à le contacter électriquement pour effectuer des mesures de transport. Une nouvelle étape de lithographie est nécessaire afin de relier les pattes de l'échantillon de taille 10 μm à des plots de courant microsoudables (*i.e.* de

taille 100μm). On dépose de l'or sur tout le substrat et l'échantillon, afin de ne pas faire de lift-off de peur de décoller l'échantillon. Il faut que le dépôt d'Au soit suffisamment épais pour que le passage de marche entre le saphir et le $NbSe_3$ puisse se faire. Sinon, les plots d'or ne seront pas connectés à l'échantillon. Nous avons rencontré de sérieuses difficultés

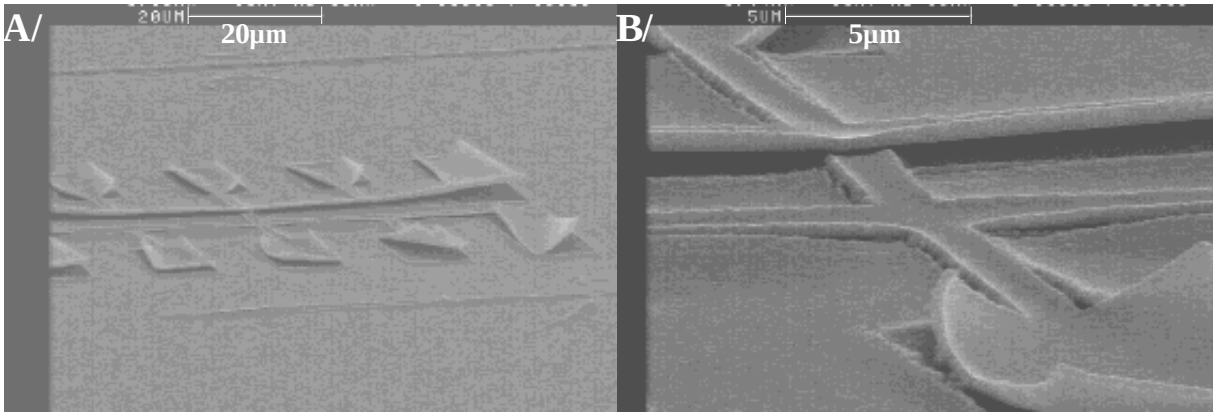


FIG. 2.9: Image MEB d'un échantillon de $NbSe_3$ recouvert d'une couche d'or décollée. A/ On distingue parfaitement la microstructure car l'Au adhére mal au passage de marche. B/ Zoom de la figure précédente au centre de l'échantillon.

pour faire adhérer l'Au au $NbSe_3$, comme on peut le voir figure 2.9 probablement parce que la RIE dégrade la surface de l'échantillon. Nous avons essayé le dépôt magnétron (réputé pour son isotropie et sa grande vitesse d'impact des atomes déposés) ou le dépôt sous ultra-vide après décapage ionique à l'argon mais c'est finalement un co-dépôt Ti/Au sous angle dans un évaporateur classique qui donne les meilleurs résultats. Le titane est d'abord évaporé afin d'améliorer le vide du bâti et de se substituer à la fine pellicule d'eau qui reste sur la surface de l'échantillon et qui ne dégaze pas. Ensuite, on commence à évaporer l'Au tout en maintenant l'évaporation de Ti. Enfin, progressivement l'évaporation de Ti est arrêtée.

2.3.2 Obtention des contacts

Une fois l'évaporation effectuée, il faut lithographier les contacts afin de ne garder que l'Au nécessaire. On étale cette fois une résine optique, car nos motifs sont assez grands pour ne pas utiliser le MEB. Les atouts de la lithographie optique sont la facilité de sa mise en œuvre et aussi sa rapidité, car le substrat entier est insolé d'un seul coup. Le masque peut être fait par un dépôt de Cr sur du verre ou simplement en imprimant le motif sur un transparent (ces deux opérations sont sous-traitées par des entreprises extérieures au laboratoire). Dans notre cas, le masque est environ cinq fois plus grand que le motif désiré et est ensuite réduit par le système de lentilles du microscope optique servant à l'insolation.

L'insolation se fait à l'aide d'une lampe à incandescence.

La résine est révélée et l'Au non protégé par la résine est gravé chimiquement. Ensuite, la résine restante est insolée puis révélée plutôt que dissoute à l'acétone, ce qui pourrait décoller l'échantillon.

Enfin, le saphir est collé à un porte-échantillon qui reliera l'échantillon au système de mesure. Les plots d'Au du saphir sont alors reliés aux pistes de Cu du porte-échantillon par des fils d'Al de 40 μm de diamètre, connectés par thermocompression (*i.e.* microsoudure). Les pistes de cuivre sont reliées à la masse pendant la microsoudure pour éviter tout choc électrostatique.

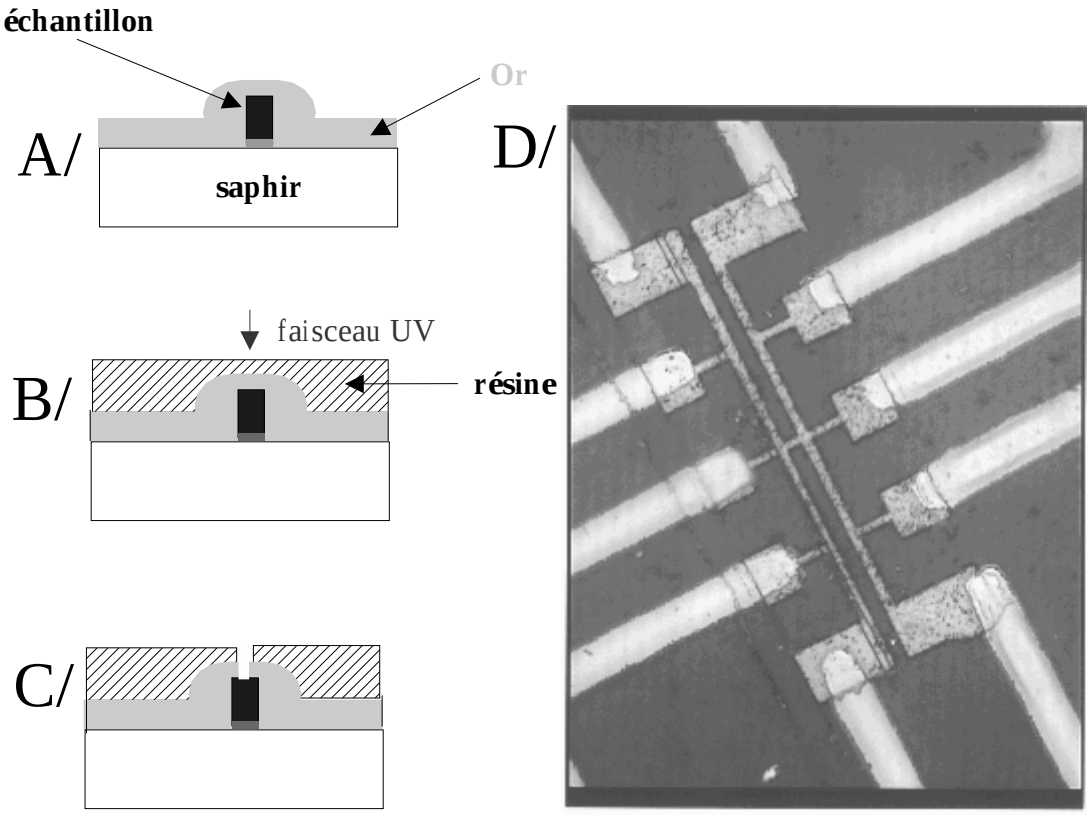


FIG. 2.10: Étape de réalisation des contacts électriques. A/ Échantillon après dépôt d'Au. B/ Échantillon pendant insolation. C/ Échantillon après gravure de l'Au et du Ti. D/ Échantillon à la fin du process.

2.4 Réalisation d'échantillon par FIB

Du fait de la lourdeur du process par lithogaphie électronique et de son faible taux de réussite, nous avons tenté de réaliser des microstructures par une technique plus souple : le FIB (Focused Ion Beam). Ne disposant pas d'un FIB au CRTBT, nous avons effectué des tests sur $NbSe_3$ chez Philips au Pays-Bas, à Orsay-Physique en France et en collaboration avec un laboratoire à Sendaï au Japon. Les premiers instruments commerciaux datent d'un peu plus de 10 ans, mais, c'est au début des années 80 que furent réalisés les premiers FIB. De nos jours, ils commencent à se répandre de plus en plus parce qu'ils offrent des possibilités combinées d'observation et de préparation d'échantillons notamment pour l'industrie du TEM (microscope électronique à transmission) ou pour la microchirurgie en R&D des circuits intégrés : des composants dans des prototypes de puces peuvent être déconnectés ou connectés localement pour corriger les erreurs plutôt que de refaire tout l'échantillon.

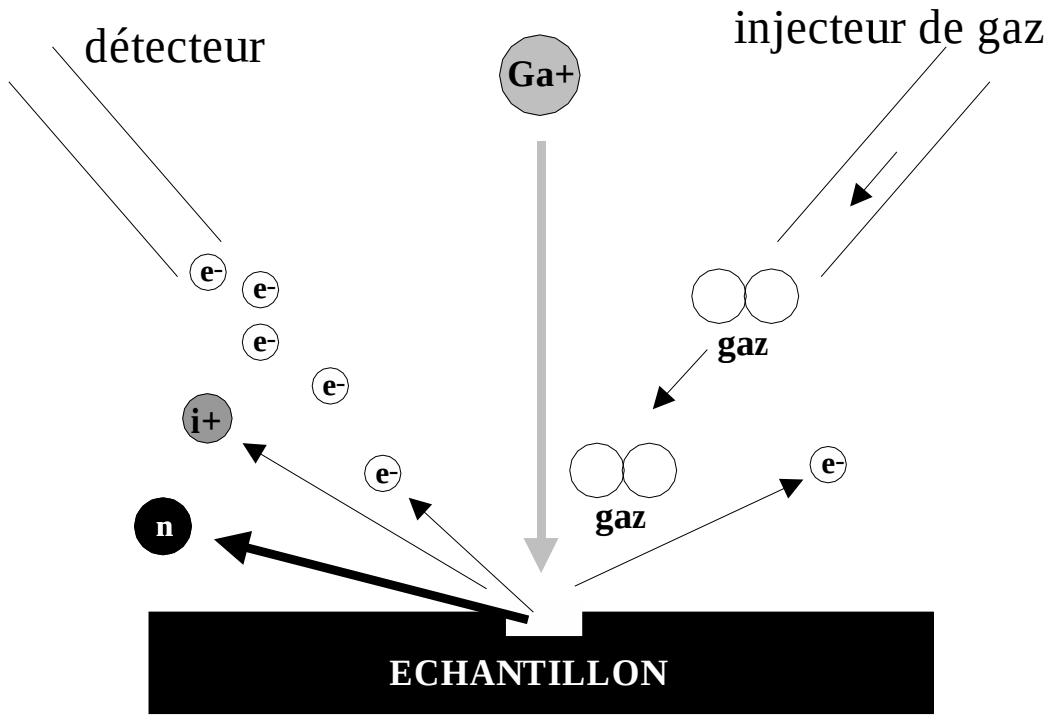


FIG. 2.11: Schéma de fonctionnement d'un FIB.

Le principe de fonctionnement est assez similaire à celui d'un MEB, si ce n'est qu'à la place d'un faisceau d'électrons, on a un faisceau d'ions Gallium focalisé sur l'échantillon à étudier. Comme on peut le voir figure 2.11, le faisceau primaire d'ion Gallium (Ga^+) frappe

la surface de l'échantillon et pulvérise un peu de matière qui s'échappe sous forme d'ions (i^+ ou i^-) ou d'atomes neutre (n). Le faisceau incident produit également des électrons secondaires (e^-). Comme le faisceau balaye la surface de l'échantillon, il est possible de recueillir et d'amplifier le signal provenant des électrons (ou ions) secondaires et d'obtenir une image de la surface. On peut obtenir alors des résolutions inférieures à 50 nm. A noter qu'à faible courant, très peu de matière est pulvérisée.

A fort courant, en maintenant le balayage du faisceau sur une zone fixe, il est possible de graver localement l'échantillon et de couper ainsi des connections inutiles (voir figure 2.12) ou de creuser des trous (voir figure 2.13). Les trous peuvent être placés à 0,1 μm près

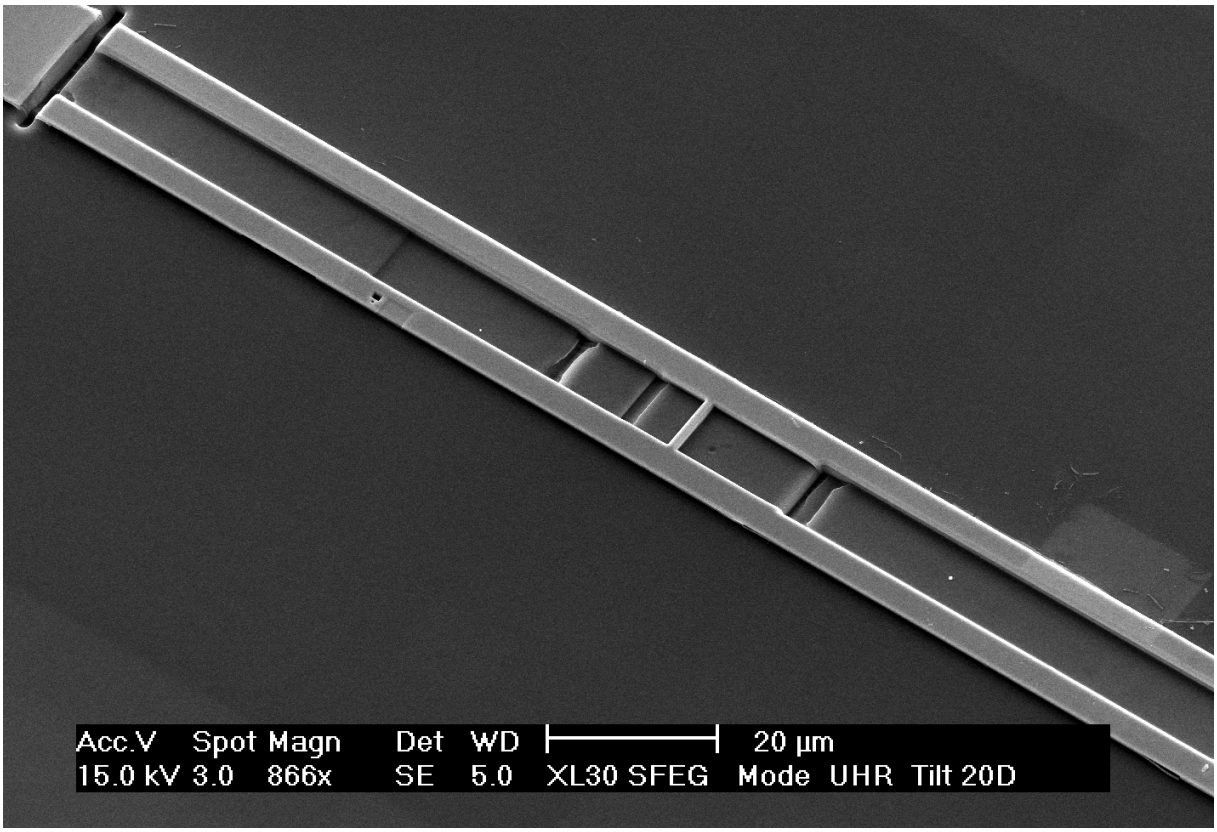


FIG. 2.12: Photographie MEB d'un échantillon de $NbSe_3$ dont on a retiré par FIB la partie centrale sur la majorité de sa longueur et où on a laissé un mince canal transverse. On peut voir en haut à gauche la forme d'origine de l'échantillon. Il est aussi possible de distinguer sur le circuit du bas deux trous carrés creusés par FIB.

et la résolution des coupures est également autour de 0,1 μm à condition que le rapport épaisseur à graver sur largeur soit inférieur à 3. Au cours de cette gravure, les échantillons sont endommagés sur une épaisseur de l'ordre de 10 nm. Dans le cas de $NbSe_3$, il y a en plus des risques d'implantation profonde du Ga.

Il est aussi possible d'injecter des gaz de la famille des halogènes à l'immédiate proximité

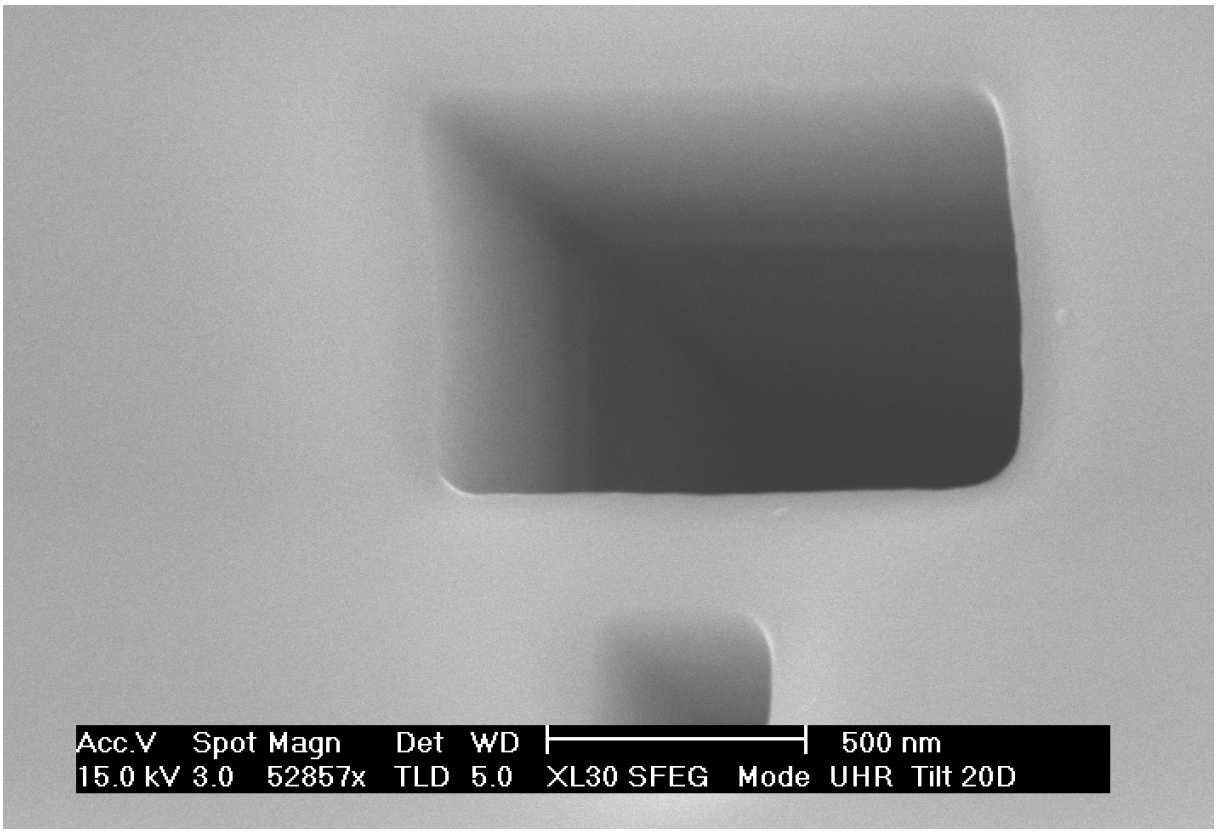


Fig. 2.13: Photographie MEB zoomant les deux trous de la photo précédente.

de la zone de travail. Ces gaz interagissent avec le faisceau incident et accroissent la sélectivité de la gravure. On peut ainsi retirer des couches d'oxide sans endommager le conducteur ou le contraire.

Mais le FIB ne fait pas que graver. Si un gaz organométallique comme $W(CO)_6$ est introduit, ses molécules peuvent se décomposer, être adsorbées par la surface de l'échantillon et former une couche métallique. En balayant longuement la même zone avec le faisceau, on peut déposer une couche épaisse qui peut servir de fils de connection entre deux parties de l'échantillon. Ainsi, nous avons pu effectuer des reprises de contacts entre un échantillon de $NbSe_3$ et une couche d'Au au niveau d'un passage de marche (voir figures 2.14 et 2.15). Cependant, ce procédé est trop lent pour déposer de longs fils ou des plots de connexion. De plus, le Tungstène de résistivité à l'ambiante 200 $\mu\Omega$·cm n'est pas très pur et contient de l'oxygène et du carbone parfois à hauteur de 30 %. Nous avons mesuré la résistance d'un fil de Tungstène en fonction de la température et nous avons constaté un comportement légèrement isolant. En revanche, un tel dépôt sur du $NbSe_3$ est très fortement isolant, prohibant l'usage de cette technique de dépôt sur nos échantillons.

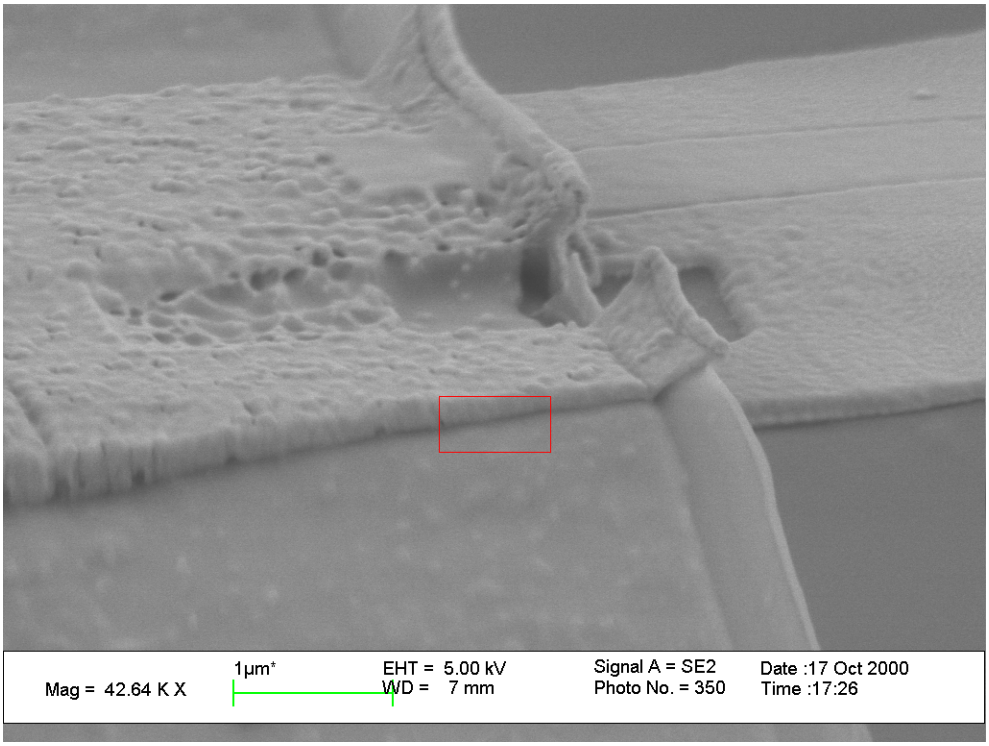


FIG. 2.14: Photographie MEB d'un échantillon de $NbSe_3$ avec un passage de marche trop abrupte à cause des résidus de résine. Le dépôt d'Au est donc discontinu au niveau de la marche. L'échantillon est gravé par FIB au niveau de la marche.

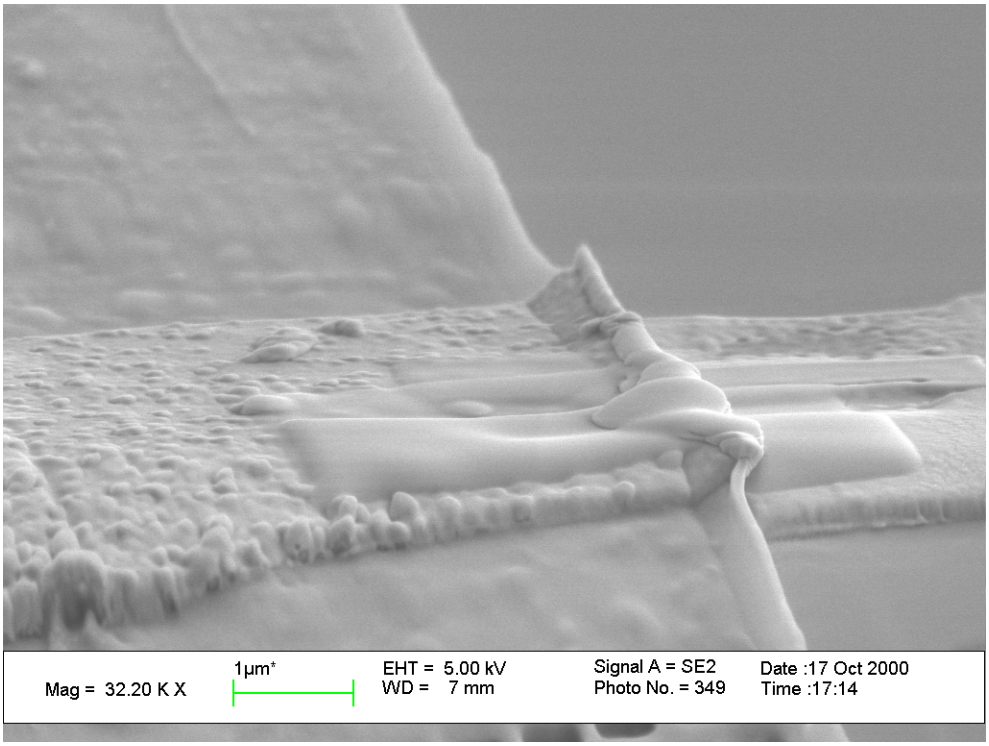


FIG. 2.15: Photographie MEB de l'échantillon précédent où une couche de Tungstène a été déposé afin de permettre un contact électrique au niveau du passage de marche.

2.5 Conclusion

On peut considérer que le procédé de microfabrication d'échantillons à ODC par lithographie électronique est optimisé mais il n'en reste pas moins délicat et long. Il faut souvent tester plusieurs centaines d'échantillons pour en avoir environ cinq suffisamment minces et un tiers d'entre eux seront exploitables (*i.e.* assez large et homogène) après amincissement à la RIE. Ensuite, à raison de 3 ou 4 motifs par échantillon restant, on parvient à un ou deux motifs mesurables au total au bout de deux semaines. De plus, il est difficile de réduire les dimensions de l'échantillon en dessous de 500 nm. C'est pourquoi, il serait intéressant d'essayer d'optimiser un procédé de microfabrication par FIB qui est plus rapide (car la gravure est directe), plus fiable (car sans gravure humide) et dont la résolution peut être meilleure (il doit être possible d'atteindre 50 nm).

3

Transport transverse à l'échelle mésoscopique

Les échantillons réalisés par microscopie électronique d'après le process du Chapitre 2 sont en forme de H (voir figure 2.8), car ils ont été conçus, en particulier, pour permettre d'injecter du courant à la fois dans la direction du mouvement de l'ODC et dans la direction perpendiculaire et ce à l'échelle mésoscopique. On entend ici mésoscopie aussi bien en terme de cohérence que selon son sens galvaudé, synonyme d'échantillon de petite taille nécessitant des étapes de microfabrication. En effet, nous désirons déterminer si l'injection d'un courant transverse accroît vraiment la cohérence de l'onde ; mais, compte tenu de la taille des échantillons de $NbSe_3$, il est impossible de réaliser des électrodes d'injection transverses de taille contrôlée sans lithographie. Enfin les électrodes de mesure de tensions doivent, de plus, être non perturbatives (habituellement les électrodes consistent en un métal évaporé sur ou sous l'échantillon, il y a alors un risque de conversion de l'onde en électrons normaux au niveau de l'électrode et donc de perturber le mouvement de l'ODC) ce qui ne peut se faire que par des procédés de microfabrication.

3.1 Mesure de la résistance transverse dans $NbSe_3$

$NbSe_3$ est un métal anisotrope à l'ambiante, c'est à dire, qu'il conduit mieux le courant dans la direction $\overrightarrow{b}$ dite longitudinale que dans les deux autres directions : la largeur selon la direction $\overrightarrow{c}$ et l'épaisseur dans la direction $\overrightarrow{a^*}$. Bien que la conductivité dans la direction longitudinale soit bien connue (voir figure 1.3), les mesures dans les directions transverses manquent de précision.

La première tentative de mesure de la conductivité dans le sens de la largeur date de 1978 par Ong *et al.* [56], à l'aide la méthode de Montgomery [51]. Ils obtinrent que la conductivité transverse présente des anomalies aux mêmes températures que la conductivité longitudinale. En combinant ces résultats avec des mesures d'effet Hall, il fut établi que c'est bien le nombre de porteurs qui est réduit au cours de la transition et non le temps

de collision. Enfin, il purent estimer un rapport d'anisotropie autour de 20, qui varie avec la température. Cependant, ces mesures sont entachées d'une imprécision de l'ordre de 50 %, car elles furent obtenues avec des contacts à la laque d'Argent dont la taille est difficile à évaluer et est du même ordre de grandeur que celle de l'échantillon. Or, dans la méthode de Montgomery, il faut que les contacts soient les plus petits possibles et que la taille de l'échantillon soit connue avec précision.

Récemment, la résistance dans la direction $\overrightarrow{c}$ fut mesurée pour des échantillons de $NbSe_3$ en forme de tubes [71]. Les courbes obtenues ont la même allure que celles de Ong *et al.*, mais les conductivités transverse et longitudinale ne pouvaient être mesurées pour un même échantillon permettant de déduire la variation du rapport d'anisotropie. De plus, leurs échantillons, de par leur forme, ne peuvent être pris comme standard.

Avec nos échantillons en forme de H, il nous a été possible de mesurer en 4 fils, à la fois la conductivité transverse et longitudinale et donc d'en déduire la variation du rapport d'anisotropie avec la température de 4K à 300K. L'erreur est inférieure à 5 % (voir figure 3.1), car nos contacts sont réguliers et les dimensions de nos échantillons sont aisément

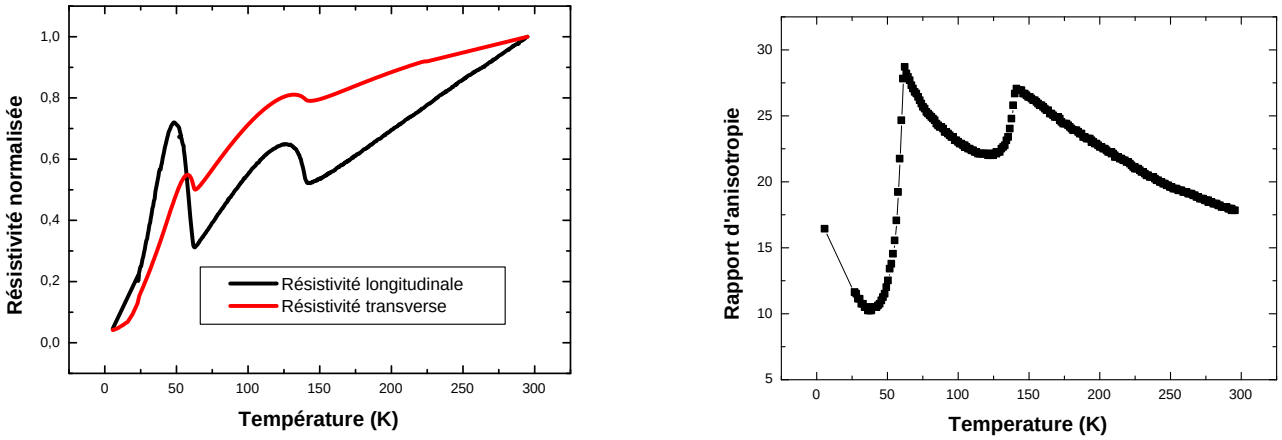


FIG. 3.1: A gauche : variation des conductivités transverse et longitudinale renormalisées en fonction de la température. A droite : variation du rapport d'anisotropie sur un échantillon de $NbSe_3$ en forme de H. On remarque les deux pics au niveau des deux transitions.

mesurables avec un microscope à haute résolution. Qualitativement, nous n'avons toutefois pas de véritables différences avec les résultats de Ong *et al.*, si ce n'est que la température de transition longitudinale est plus faible d'environ 7 K par rapport à celle de la transition transverse. Ce point concernant les variations de la température de transition sera abordé aux paragraphes 4.3 et 6.2.2.

Enfin, des tentatives de mesures de la résistivité le long de $\overrightarrow{a^*}$ sont en cours, soit avec des échantillons gravés par FIB dans le sens de l'épaisseur (Latyshev), soit en mesurant les inhomogénéités d'injection de courant à l'aide de multicontacts très rapprochés (Thorne et Van der Zant). Ces mesures donnent, à première vue, des rapports d'anisotropie supérieurs à 100 à l'ambiante et même supérieurs à 10 000 à 4 K.

3.2 Inhomogénéité d'injection transverse dans les ondes de densité de charge et réduction du champ seuil

Le mouvement collectif des ondes de densité de charge est possible lorsqu'un champ électrique plus grand qu'une valeur seuil E_T est appliqué (ce champ seuil E_T est une mesure de la force nécessaire pour surmonter le piégeage de la phase de l'ODC par des impuretés distribuées aléatoirement). Ce comportement est très similaire au mouvement des vortex dans les supraconducteurs de type II. C'est l'une des raisons pour laquelle les récentes avancées théoriques dans le domaine des phases de vortex [20] sont appliquées au domaine des ODC. Néanmoins, les ODC forment un réseau unidimensionnel alors que les vortex forment un réseau bidimensionnel, c'est pourquoi les nouveaux concepts dans le domaine des vortex peuvent conduire à des comportements différents dans les systèmes à ODC.

En effet, Radzihovski et Toner [61] ont prédit que l'application d'un courant transverse au mouvement d'une ODC doit réduire exponentiellement le champ seuil. Cet effet apparaît seulement pour une valeur de courant au-dessus d'une valeur de crossover, J_c, (de l'ordre de 10^3-10^4 A/cm^2 pour $NbSe_3$) plus ou moins accessible expérimentalement. L'ingrédient principal de cette théorie est l'ajout à l'équation phénoménologique du mouvement (modèle FLR) [18] d'un terme "convectif" proportionel à la vitesse des électrons normaux transverses et au gradient transverse de la phase.

Dans les systèmes à ODC, les fronts d'onde sont perpendiculaires à la direction du mouvement de l'onde mais peuvent être "gondolés" par le désordre. Physiquement le terme "convectif" décrit la deflection des électrons transverses par les fronts d'ondes courbés. Ce transfert d'impulsion des électrons vers l'ODC force les fronts d'onde à être perpendiculaires à la direction du mouvement de l'onde et donc à retrouver leur forme d'origine en l'absence de désordre (voir figure 3.2). Comme l'existence d'un champ seuil provient du désordre, l'application d'un champ transverse doit réduire le champ seuil. Des expériences indiquant l'existence d'un tel effet ont été publiées [44, 84] mais il subsiste une controverse

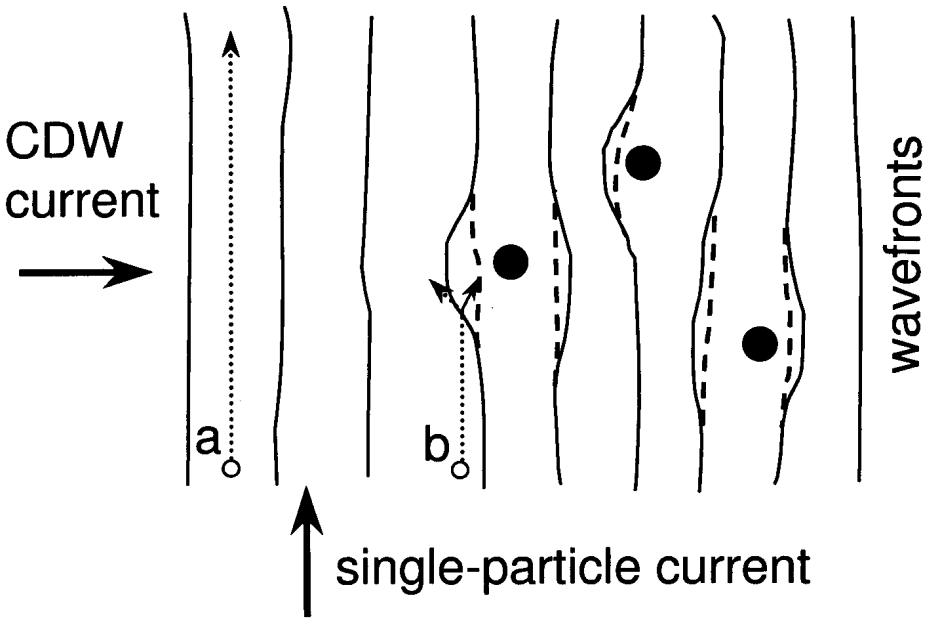


FIG. 3.2: Modèle dynamique de la réduction du champ seuil. Les lignes verticales représentent les fronts d'onde de l'onde de densité de charge qui peut se déplacer dans la direction horizontale lorsqu'elle est dépiégée. Les ronds noirs représentent les impuretés ou d'autres défauts dans le cristal. La direction du mouvement de l'ODC et la direction du courant transverse sont indiquées par des flèches. Les petits ronds creux ("a" et "b") représentent les électrons normaux transverses. Les déformations des fronts d'onde provenant du transfert d'impulsion avec le courant transverse par la ligne sont indiquées par des tirets.

sur l'interprétation des résultats [4]. Ici, notre but est (i) d'illustrer, à l'aide de simulations numériques, les différents régimes gouvernant la physique de l'injection transverse dans des systèmes anisotropes et (ii) de présenter des mesures sur un composé à ODC dans un régime où la théorie de Radzihovski *et al.* [61] peut être testée sans ambiguïté.

3.2.1 Revue et analyse des travaux précédents

3.2.1.1 *Expériences sur $NbSe_3$*

La réalisation d'électrodes transverses dans $NbSe_3$ nécessite des techniques de microfabrication à cause de la petitesse de la largeur des échantillons (une dizaine de microns). Markovic *et al.* [44] réussirent à placer des microcontacts sur un échantillon de $NbSe_3$ par lithographie électronique et à mesurer un échantillon avec différentes largeurs de contacts transverses (voir figure 3.3). Ils observèrent alors pour différentes géométries et différentes températures une baisse du champ seuil quand le courant transverse augmente, qui peut être parfaitement ajustée en utilisant les équations de Radzihovsky et Toner [61]. Les cou-

rant de crossover déduient de leurs ajustements sont un peu plus faible que 10^3 A/cm^2, mais comme l'ont noté Yue *et al.* [84], il manque entre autres choses, un facteur "2" dans l'exponentielle de leur équation d'ajustement. Ainsi cette expérience n'est en accord que qualitatif avec la théorie.

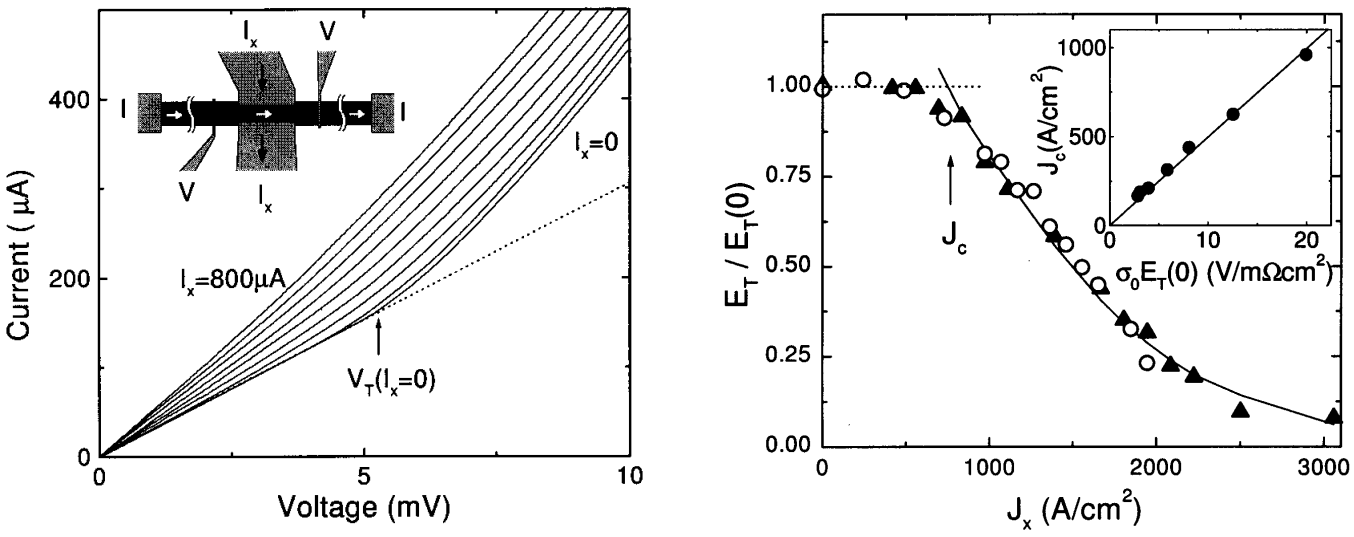


FIG. 3.3: A gauche : caractéristiques I-V pour un cristal de $NbSe_3$ à 45 K avec des valeurs du courant transverse de 0 à 800 μA (du bas vers le haut). La ligne en pointillé représente le comportement ohmique des électrons non condensés. Les points expérimentaux s'écartent de cette ligne lorsque l'onde de densité de charge est dépiégée, contribuant à un courant additionnel. Le seuil de dépiégeage V_T, indiqué par une flèche, décroît quand un courant transverse I_x est appliqué ; insert : schéma du circuit transistor avec le cristal (zone sombre) et les six contacts d'or (zones claires : I pour le courant longitudinal qui est injecté aux extrémités du cristal, V pour la mesure de tension et I_x pour l'injection transverse). A droite : Champ seuil de dépiégeage E_T normalisé par sa valeur pour $J_x = 0$, en fonction de la densité de courant transverse J_x à 55 K pour deux géométries différentes. La largeur des contacts transverses sont 100 μm (ronds) et 30 μm (triangles). La ligne en trait continu représente l'ajustement par l'équation 1 de la réference [44] ; insert : J_c en fonction de $\sigma_0 E_T(0)$ comparé avec l'équation 3.2.

Plus tard Artemenko *et al.* [4], peu convaincus par le terme "convectif" introduit dans la référence [61], essayèrent de trouver ce terme plus rigoureusement (*i.e.* par le biais de calculs microscopiques). Ils découvrirent que ce terme est en fait plusieurs ordres de grandeur moins important qu'il n'avait été prédit. Ainsi le véritable courant de cross-over J_c semble au delà de toute vérification expérimentale. Ils expliquèrent également que l'effet observé par Markovic *et al.* [44] est probablement dû à des inhomogénéités de courant. En effet, dans un matériau anisotrope, des porteurs injectés perpendiculairement à la direction la plus conductrice se répandent dans l'échantillon (voir figure 3.4). On peut noter que dans cette expérience les électrodes transverses recouvrent une partie du cristal et donc que l'inhomogénéité du courant est encore plus grande.

La part du courant longitudinal provenant de l'injection de $J_\perp$ à travers les électrodes transverses peut être calculée explicitement en supposant une densité de courant uniforme

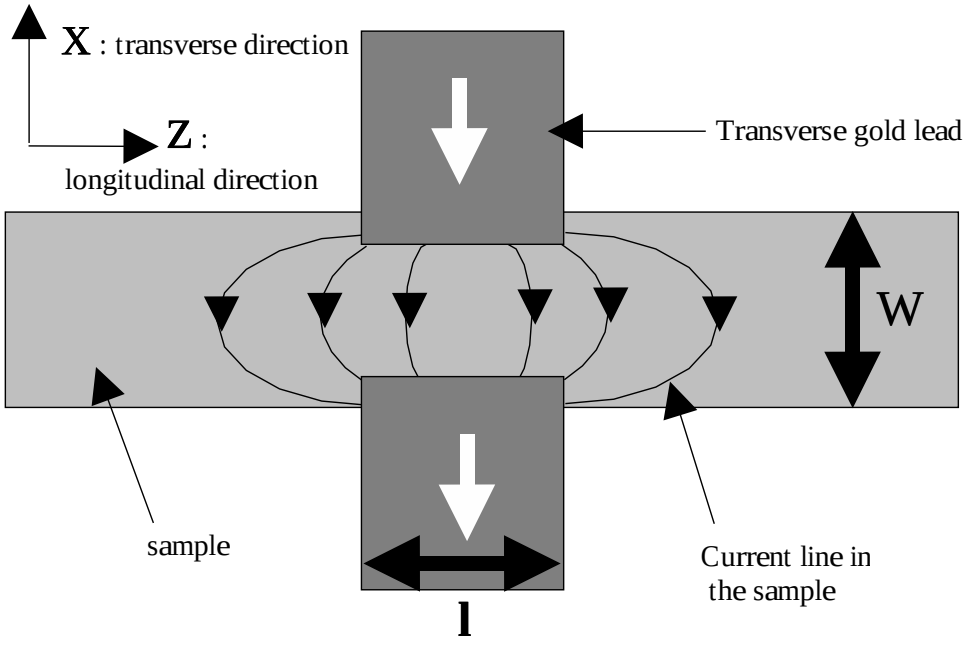


FIG. 3.4: Lignes de courant pour la géométrie de l'expérience de la référence [44] quand un courant transverse est appliqué.

dans les contacts, en se limitant à deux dimensions et en prenant en compte les conditions aux limites. L'échantillon est alors assimilable à une série infinie de condensateurs :

$$E_z = \frac{J_\perp}{2\pi\sqrt{\sigma_{xx}\sigma_{zz}}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} ln\Big(\frac{\sigma_{xx}(z-l/2)^2+\sigma_{zz}(x+(2n+1/2)w)^2}{\sigma_{xx}(z+l/2)^2+\sigma_{zz}(x+(2n+1/2)w)^2} \times \frac{\sigma_{xx}(z+l/2)^2+\sigma_{zz}(x+(2n-1/2)w)^2}{\sigma_{xx}(z-l/2)^2+\sigma_{zz}(x+(2n-1/2)w)^2}\Big) \tag{3.1}$$

$$E_x = \frac{J_\perp}{\pi\sigma_{xx}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \arctan\left(\frac{\sqrt{\sigma_{xx}}(x-l/2)}{\sqrt{\sigma_{zz}}(z+(2n+1/2)w)}\right) + \arctan\left(\frac{\sqrt{\sigma_{xx}}(x-l/2)}{\sqrt{\sigma_{zz}}(z+(2n+1/2)w)}\right) + \arctan\left(\frac{\sqrt{\sigma_{xx}}(x-l/2)}{\sqrt{\sigma_{zz}}(z+(2n+1/2)w)}\right) + \arctan\left(\frac{\sqrt{\sigma_{xx}}(x-l/2)}{\sqrt{\sigma_{zz}}(z+(2n+1/2)w)}\right)$$

où l'origine des coordonnées est au centre de l'échantillon, w est la largeur de l'échantillon, l est la largeur des électrodes transverses, L est la distance entre les contacts de tension, σ_{zz} est la conductivité longitudinale et σ_{xx} la conductivité transverse. La figure 3.5 montre une simulation d'un échantillon dans la géométrie utilisée par Markovic *et al.*. Il peut être estimé que pour un courant nominal transverse de 200 μA (quand le champ seuil est réduit

substantiellement dans l'expérience de la référence [44]), plus d'un tiers de l'échantillon est soumis à un champ longitudinal supérieur à la moitié du champ seuil ($E_T = 0.25$ V/cm). Donc un courant nominal longitudinal bien plus petit sera nécessaire pour dépiéger l'ODC. Ainsi, il est clair que la réduction du champ seuil par un courant transverse provient en grande partie dans ce cas de l'anisotropie. Pour les autres géométries explorées par Markovic *et al.*, les inhomogénéités sont encore plus prononcées.

Donc, dans cette géométrie, il n'est pas possible d'étudier l'effet prédit par Radzihovski *et al.* De plus Artemenko *et al.* [4] reproduisirent les résultats expérimentaux de Markovic *et al.* [44] en injectant un courant longitudinal inhomogène à l'aide de multiélectrodes.

Donc de nouvelles expériences sont nécessaires.

3.2.1.2 *Expérience dans les bronzes blues*

Récemment Yue *et al.* [84] essayèrent d'élucider le problème en utilisant un autre type de matériau à ODC quasi 1D : le bronze bleu ($K_{0.3}MoO_3$). Ils mesurèrent les caractéristiques courant/tension longitudinales d'un échantillon à 77 K pour différentes valeurs du courant transverse. Ils observèrent une décroissance du champ seuil quand le courant transverse augmente ; mais cette décroissance est bien plus faible que prédite par la théorie de la référence [61] indiquant que la théorie est moins fiable (voir figure 3.6).

Les auteurs affirment également que parce que a) le bronze bleu est plus anisotrope et b) la réduction du champ seuil est plus douce dans leur échantillon, le rôle des inhomogénéités de courant dues à l'anisotropie et souligné dans la référence [4] n'est pas si cruciale. Cependant il faut noter la contradiction suivante : comment l'anisotropie peut-elle jouer un rôle et n'avoir aucun effet sur la forme des lignes de courant puisqu'ils considèrent que, grâce à la petite taille de leurs électrodes transverses, les lignes de courant peuvent être considérés comme strictement perpendiculaires à la direction longitudinale ?

En fait cette affirmation est incorrecte. En effet, les lignes de courant dans leur échantillon peuvent être calculées (voir figure 3.7) de la même manière que pour $NbSe_3$. On peut montrer que l'effet des inhomogénéités est tellement important que même le courant transverse est inhomogène et extrêmement loin de la valeur nominale aux électrodes (au moins par deux ordres de grandeur dans tout l'échantillon). Comme c'est le flux du champ électrique (renormalisé par l'anisotropie) qui est conservé et comme les inhomogénéités sont importantes (*i.e.* la densité des lignes de champ décroît très rapidement lorsque l'on

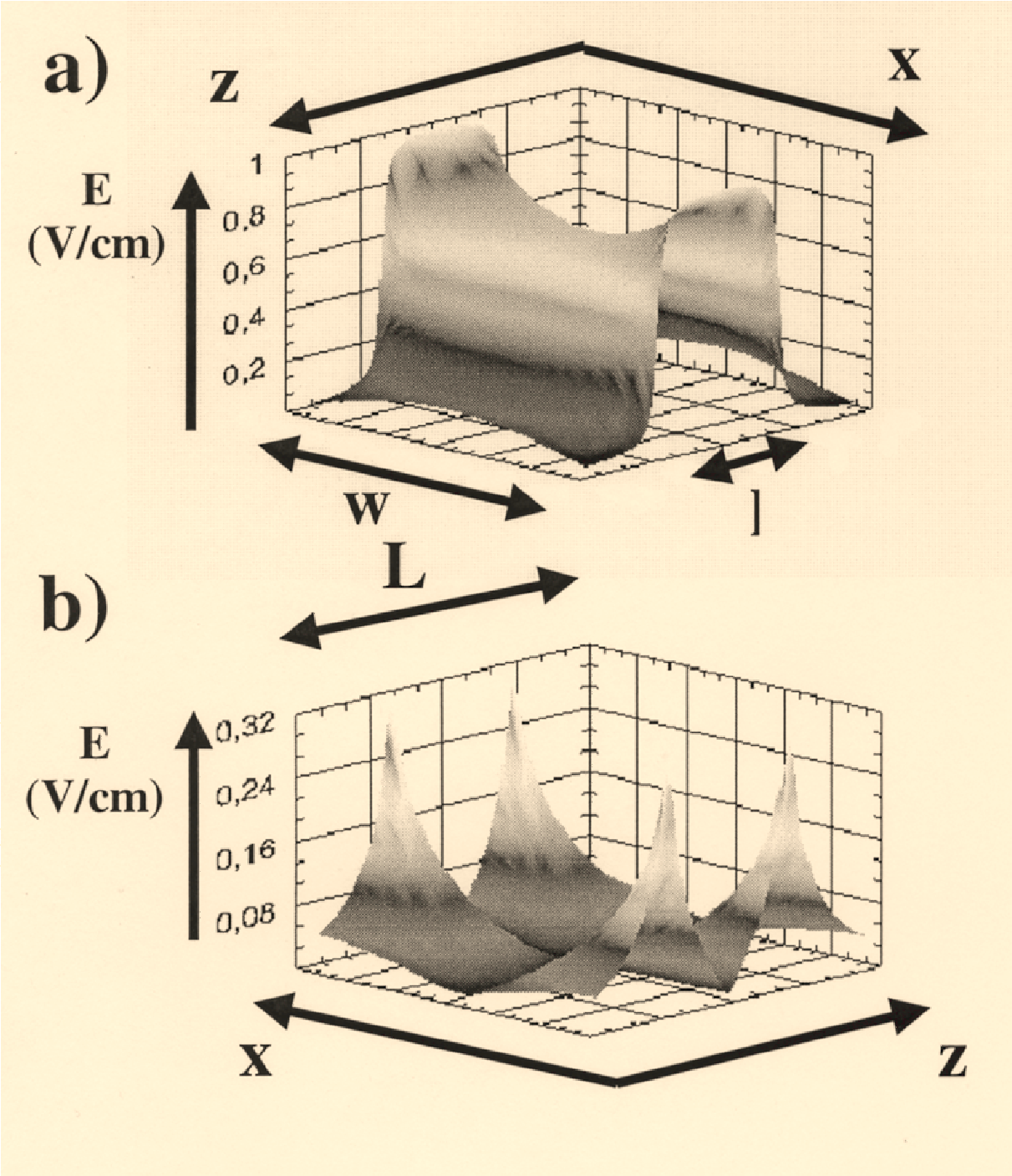


Fig. 3.5: Simulation de l'injection transverse pour un échantillon de $NbSe_3$ avec les paramètres de la référence [44] : T = 45 K pour un courant transverse de 200 μA (donc la densité de courant transverse nominale est $J_\perp = 800$ A/cm^2 et $E_\perp = 1$V/cm), w = 36 μm, l = 100 μm, L = 250 μm, σ_{zz}= 8000 $(\Omega\text{cm})^{-1}$ et σ_{xx}= 800 $(\Omega\text{cm})^{-1}$. a) champ transverse. b) valeur absolue du champ longitudinal.

s'éloigne des électrodes), le champ est très faible à l'intérieur de l'échantillon. Ceci provient du choix de la largeur des électrodes transverses comparée à la largeur de l'échantillon de la référence [84] qui est bien pire que la géométrie de la référence [44]. A l'aide de l'équation 3.1, il peut être estimé que pour un courant transverse nominal de 1,5 mA où le courant

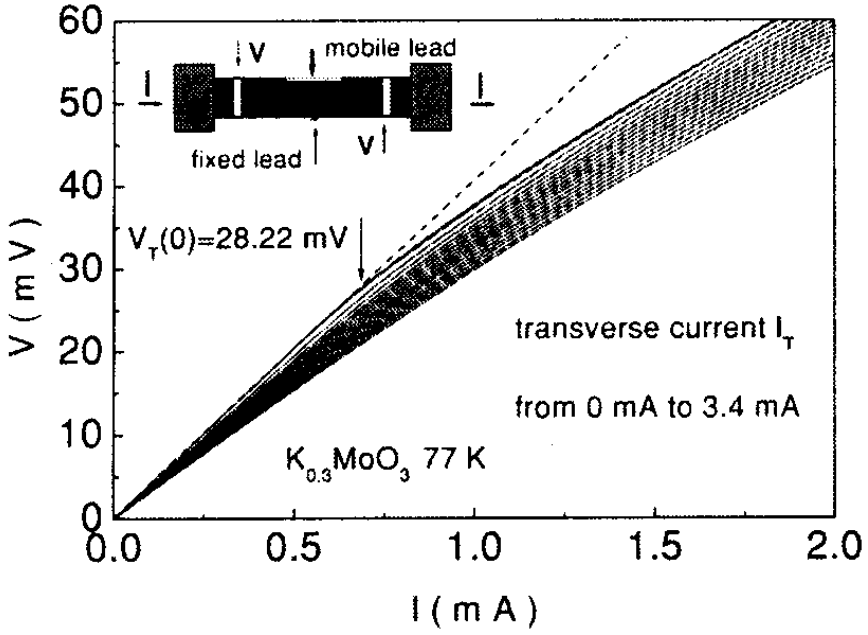


FIG. 3.6: caractéristiques courant-tension pour $K_{0.3}MoO_3$ à 77 K pour un courant transverse allant de 0 à 3,4 mA (de haut en bas). La ligne en tiret donne la résistance des électrons normaux. Le champ seuil de dépiégeage initial $V_T(0)$ pour un courant transverse $I_T = 0$ est indiqué par une flèche. L'insert montre le schéma du transistor. La distance entre les deux contacts de tension est de 2,4 mm, les deux contacts transverses sont larges de 0.1 mm, l'un est un contact à la laque d'argent au milieu de l'échantillon et l'autre est un contact mobile le long de la direction longitudinale pour permettre que I_T circule exactement perpendiculairement à la direction des chaînes en ajustant l'alignement des deux contacts.

seuil est réduit de 20 %, au moins 10 % de l'échantillon est soumis à un courant longitudinal supérieur à la moitié du champ seuil. Dans ces conditions, il ne peut être affirmé que l'effet d'un champ transverse sur la dynamique des ODC a été testé.

La plus faible décroissance de leur champ seuil par rapport à $NbSe_3$, alors que l'anisotropie est plus importante dans les bronzes bleus, provient également de la forme de leur échantillon. En effet il n'est pas étonnant que l'effet de l'injection transverse soit plus petit si les mesures sont effectuées avec des contacts de tension longitudinaux loin des électrodes transverses. Une comparaison approximative ne peut être faite que lorsque les rapports entre la surface de l'échantillon entre les contacts de tension et la largeur des électrodes transverses sont du même ordre. Ce rapport est plus de 300 fois plus grand pour l'échantillon de la référence [84] que pour $NbSe_3$ dans la référence [44], tandis que l'anisotropie est seulement dix fois plus importante dans les bronzes bleus (et il est connu [80] que c'est la racine carrée de l'anisotropie qui renormalise le volume de l'échantillon).

Enfin, il faut noter la très surprenante décroissance de la résistance de l'échantillon de $K_{0.3}MoO_3$ de la référence [84] avant le champ seuil quand le courant transverse I_T aug-

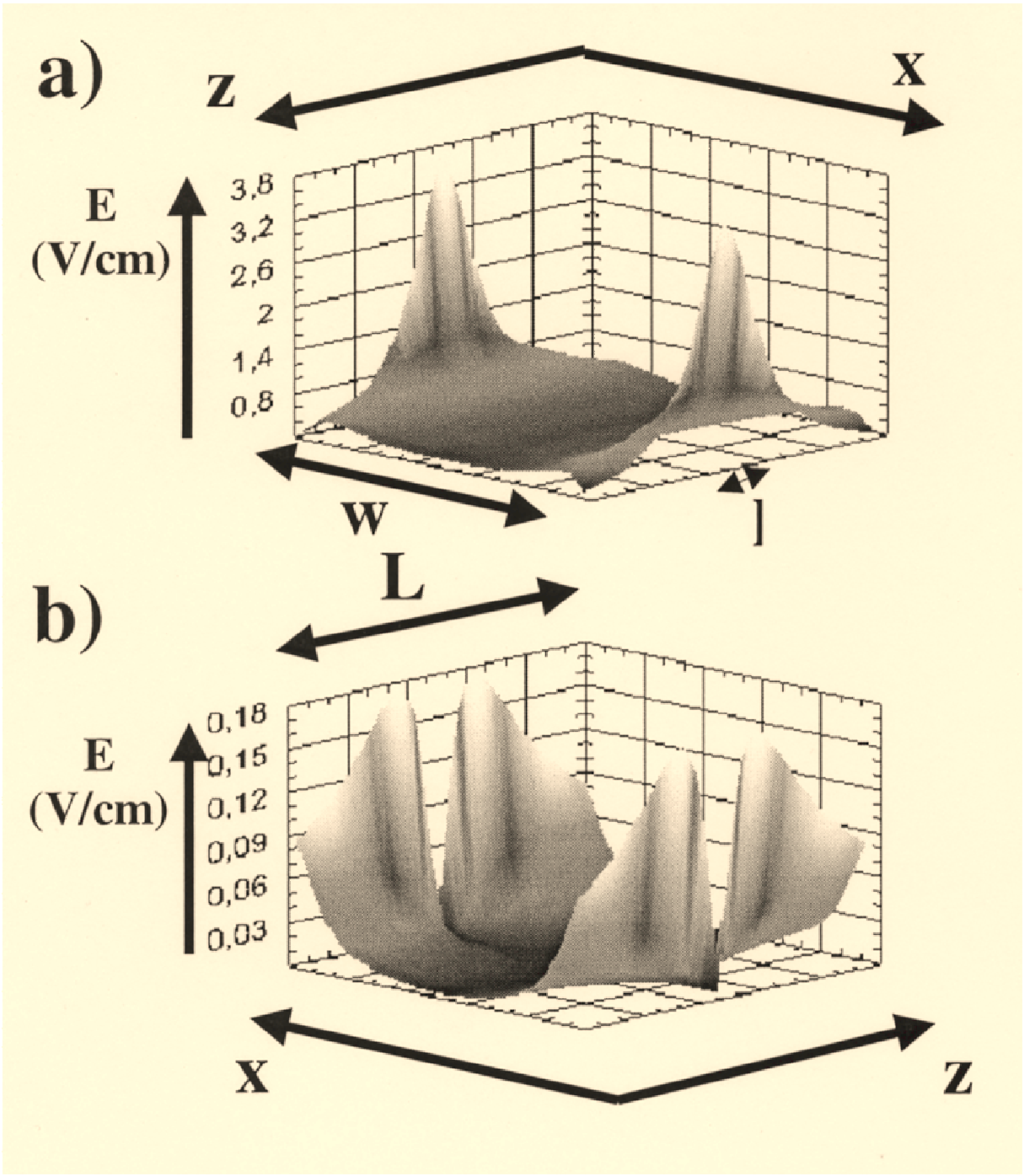


FIG. 3.7: Simulation de l'injection transverse pour un échantillon de $K_{0.3}MoO_3$ avec les paramètres de la référence [84] : T = 77 K pour un courant transverse de 1,5 mA (donc la densité de courant nominal est $J_\perp$ = 10 A/cm^2 et $E_\perp$ = 33 V/cm), w = 1200 μm, l = 100 μm, L = 2400 μm, σ_{zz}= 30 $(\Omega\text{cm})^{-1}$ et σ_{xx}= 0.3 $(\Omega\text{cm})^{-1}$. a) champ transverse. b) valeur absolue du champ longitudinal.

mente. Premièrement, cet effet sur R_s n'a pas été observé dans $NbSe_3$ (référence [44] et voir plus loin). Deuxièmement, cet effet est indépendant de la théorie de Radzihovsky et Toner puisque dans ce cas l'ODC est piégée donc il ne peut y avoir d'effets hors équilibre. Troisièmement, la décroissance de l'amplitude du gap semble peu plausible puisque la ten-

sion appliquée est très faible comparée au gap. Une explication possible pourrait être que leur contact transverse est un contact mobile. Donc la résistance de contact doit être très élevée. Étant donné que leur courant transverse n'est pas négligeable, une augmentation de la température de leur échantillon (ce qui se manifesterait par une diminution de R_s) peut être suspectée et ce malgré le fait que leur échantillon soit plongé dans l'azote liquide. En bref, cette expérience n'est pas concluante et il apparaît que la physique de base de l'injection transverse n'a probablement pas été comprise.

3.2.2 Réalisation d'un échantillon de $NbSe_3$

L'injection transverse dans ce genre d'expérience est analogue à l'application d'un champ entre deux plaques métalliques parallèles. La forme des lignes de champ est gouvernée par deux effets opposés même dans un matériau isotrope : "l'effet condensateur" où le champ à l'intérieur du condensateur est homogène et perpendiculaire aux plaques. Cet effet est prédominant quand les plaques sont les plus proches possibles et de tailles infinies (*i.e.* $w/l \to 0$ avec les notations de la figure 3.4) ; "les effets de bord" où les lignes de champ se répandent dans tout l'espace. Cet effet est prédominant quand les plaques sont si loin les unes des autres, qu'elles peuvent être assimilées à des charges ponctuelles (*i.e.* $w/l \to \infty$). L'anisotropie $\alpha = \sigma_{zz}/\sigma_{xx}$ ne fait qu'augmenter la dispersion des lignes de champ et peut être prise en compte en renormalisant la largeur par $\sqrt{\alpha}$. Ainsi, dans notre cas, nous voulons réaliser un échantillon sans dispersion *i.e.* avec $w\sqrt{\alpha}/l \to 0$.

Nous avons réalisé un échantillon de $NbSe_3$ avec w = 500 nm, l = 10 μm and L = 40 μm. Pour cette géométrie il peut être calculé que la dispersion des lignes de champ est grandement réduite (Fig. 3.8). De plus les contacts de tension ne sont pas trop loin des contacts d'injection transverse par rapport à la géométrie de Yue *et al.* Ainsi au moins un quart de l'échantillon entre les contacts de tension est soumis à un courant transverse. Comme l'augmentation de la cohérence prédit par Radzihovski et Toner doit s'étendre même là où il n'y a pas de courant transverse (à cause des forces élastiques), nous pouvons considérer que cet effet doit être aisément détectable dans notre géométrie.

L'échantillon à la fin du process peut être observé à la figure 3.9 avec ses dix pattes : deux circuits longitudinaux symétriques (à gauche et à droite) et un circuit transverse. Dans le circuit longitudinal de gauche, le courant est injecté entre les contacts appelés I+ et I-, la tension longitudinale est mesurée entre V+ et V- et le courant transverse est injecté entre I_{tr}+ et I_{tr}-. La structure à été conçue avec deux circuits longitudinaux en cas

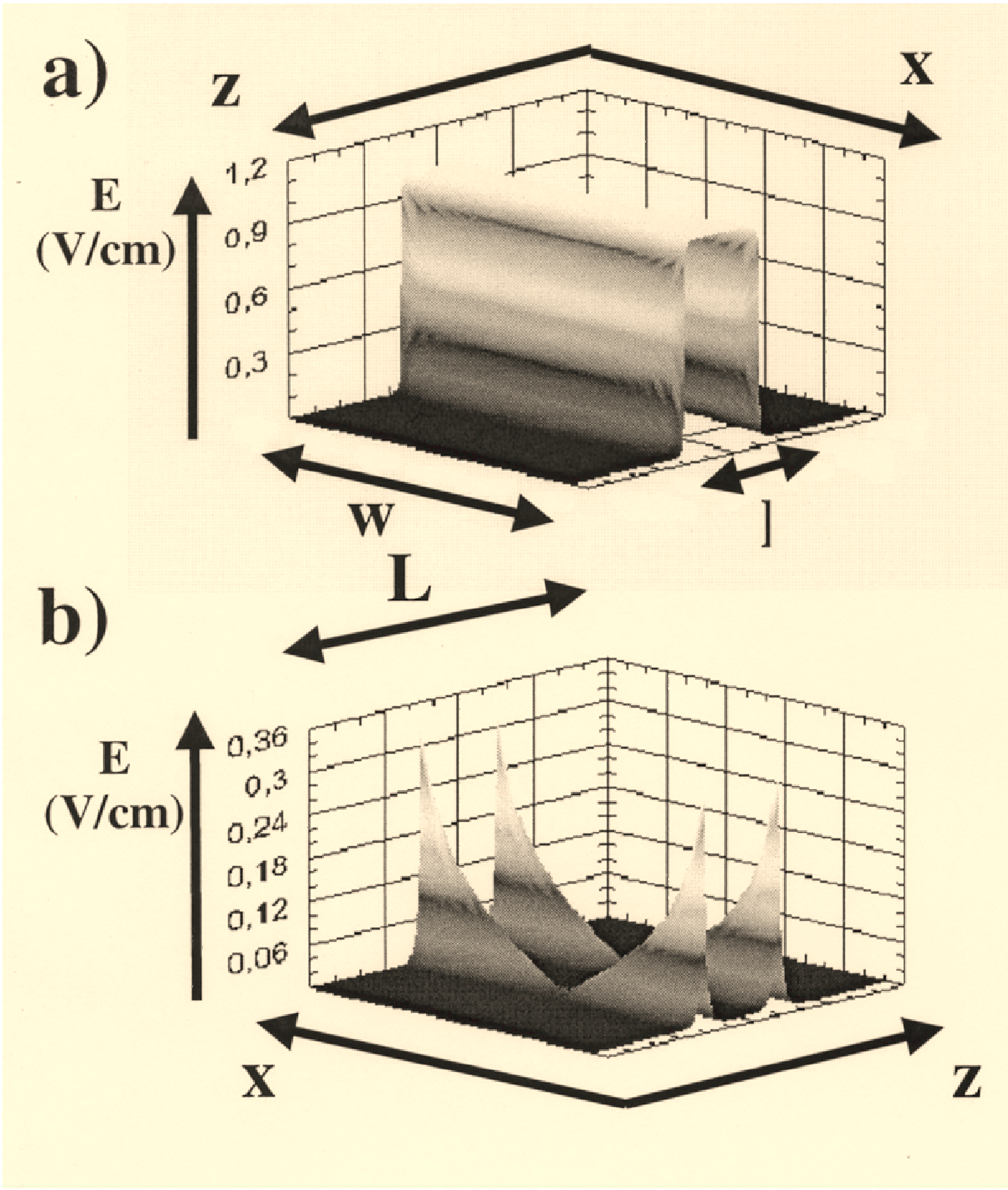


Fig. 3.8: Simulation de l'injection transverse à 45 K pour la même densité de courant qu'à la figure 3.5 pour comparaison, w = 500 nm, l = 10 μm, L = 40 μm, σ_{zz}= 8000 $(\Omega\text{cm})^{-1}$ et σ_{xx}= 800 $(\Omega\text{cm})^{-1}$. a) champ transverse. b) valeur absolue du champ longitudinal.

de destruction des contacts de l'un des circuits pendant le traitement en salle blanche ou pendant les mesures. De plus ce circuit permet de détecter les effets de chauffage provenant de l'injection transverse et de déterminer la véritable anisotropie de conductivité à toute température, directement en mesurant la résistance transverse. Il doit être noté également

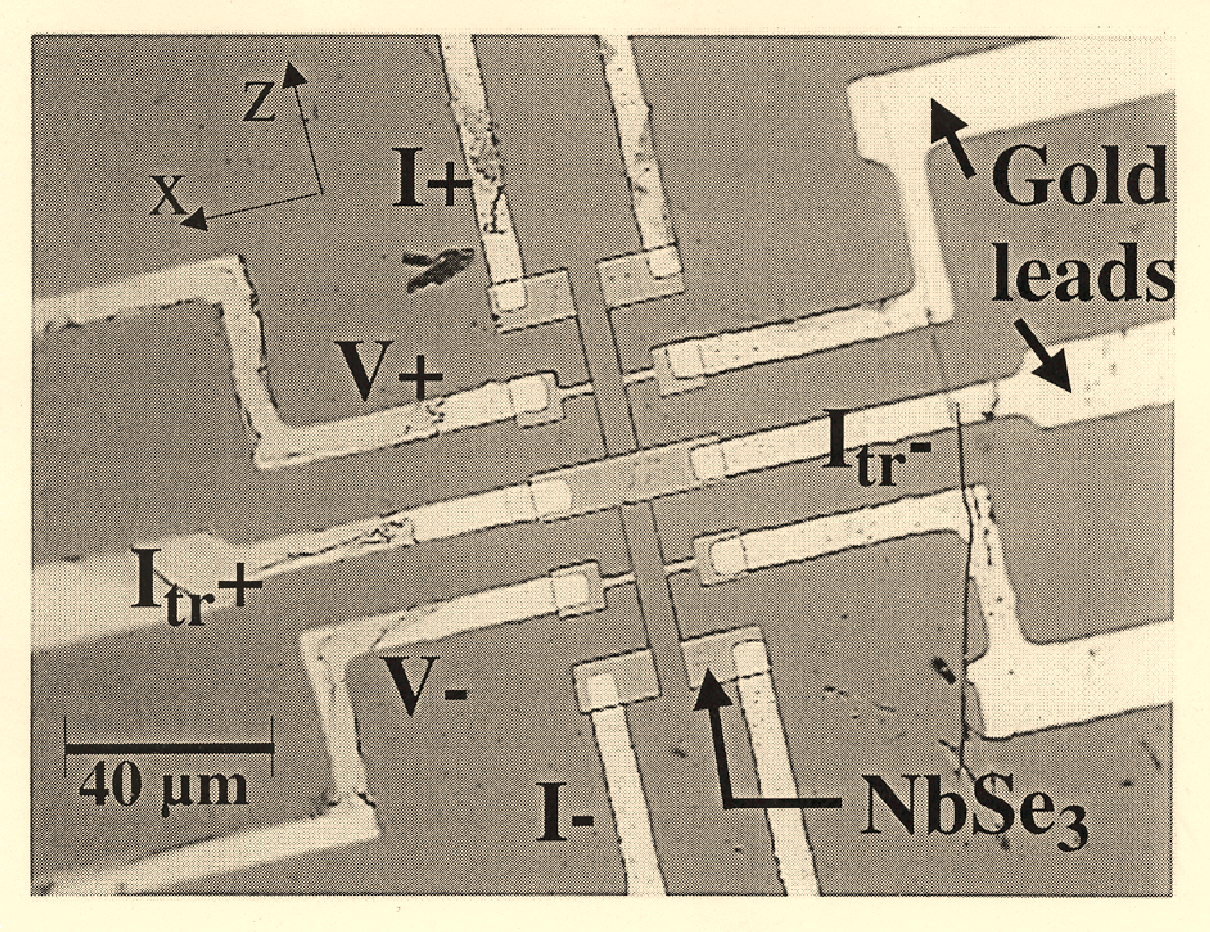


FIG. 3.9: Photographie optique à l'aide d'un microscope à haute résolution d'un échantillon de $NbSe_3$ à la fin du process de lithographie.

que dans cette configuration les électrodes d'injection transverse ne recouvrent pas le circuit longitudinal puisqu'elles sont au moins à 5 μm du circuit longitudinal de 500 nm de large.

3.2.3 Résultats expérimentaux et discussion

Les mesures consistent à enregistrer des caractéristiques courant-tension. Le courant est injecté par une source continue programmable K220. La tension est mesurée par un nanovoltmètre HP34420A. Le courant transverse est injecté par un électromèrre K617 en série avec une résistance variable. Les deux sources de courant sont flottantes. La température est contrôlée à l'aide d'un régulateur de température TRMC Barras, de telle sorte que la stabilité en température est toujours meilleure que 10 mK.

Nous avons réalisé des caractéristiques I-V longitudinales pour les deux polarités et

pour plusieurs températures en dessous des deux transitions de Peierls. Le champ seuil de notre échantillon était du même ordre de grandeur que celui de Markovic *et al.* [44] (pour être précis notre champ seuil est 2,5 fois plus grand mais la largeur de notre échantillon est plus petite, donc les effets de taille doivent augmenter le champ de dépiégeage). Donc notre échantillon est dans des conditions identiques à celles de la référence [44] vis à vis du désordre et le courant de cross-over doit être approximativement identique. D'après la référence [61], J_c s'exprime de la manière suivante :

$$J_c = \sigma_\infty E_T(0)(k_F \xi_L)(\rho_n/\rho_{CDW}) \tag{3.2}$$

où σ_∞ est la limite à fort champ de la conductivité longitudinale de l'ODC, k_F est le vecteur d'onde de Fermi, ρ_n et ρ_{CDW} sont respectivement la densité électronique des électrons normaux et de l'ODC. J_c peut être estimé de l'ordre de 10^3-10^4 A/cm^2 pour $NbSe_3$. La valeur de 10^4 A/cm^2 estimée dans la référence [61] semble être une majoration (*i.e.* dans le cas où ξ_L et $E_T(0)$ sont grands). Il peut donc être considéré que J_c ne peut pas dépasser 10^4 A/cm^2 (à part peut-être pour un échantillon très désordonné mais dans ce cas le champ seuil n'est pas détectable). Il faut noter que l'affirmation de la référence [61] d'une plus grande efficacité de l'effet du courant transverse quand le désordre est important (i.e. le courant de cross-over J_c décroît linéairement avec la longueur de Larkin ξ_L) n'est pas fondée. En effet J_c est également proportionnel au champ seuil à courant transverse nul $E_T(0)$, qui décroît avec le désordre.

Nous avons appliqué un courant transverse jusqu'à 2*10^4 A/cm^2 ce qui est légèrement au dessus de la valeur maximum de J_c calculé par Radzihovski et Toner et un ordre de grandeur au dessus de la plus grande valeur obtenue par Markovic *et al.* Mais nous n'avons jamais observé une décroissance du champ seuil ni une décroissance de la résistance normale. Les caractéristiques I-V longitudinales sans et avec un courant transverse $J_\perp = 2*10^4$ A/cm^2 sont superposables (voir figure 3.10). A chaque température, nous avons également mesuré la caractéristique I-V transverse, jusqu'au plus grand courant transverse exploré, pour être sûr que la résistance transverse ne varie pas à cause des effets de chauffage.

Il n'a pas été possible d'effectuer des mesures fiables à plus fort champ pour tester la plus grande valeur de crossover prédite par Artemenko *et al.* [4], à cause des risques de chauffage, des dommages électriques et surtout à cause de l'alignement. En effet si le motif n'est pas exactement aligné avec les directions cristallographiques de l'échantillon (*i.e.* l'angle θ entre les électrodes transverses du motif et l'axe $\vec{c}$ n'est pas égal à zéro), quand le courant est injecté "transversalement" selon le motif, en fait une petite partie

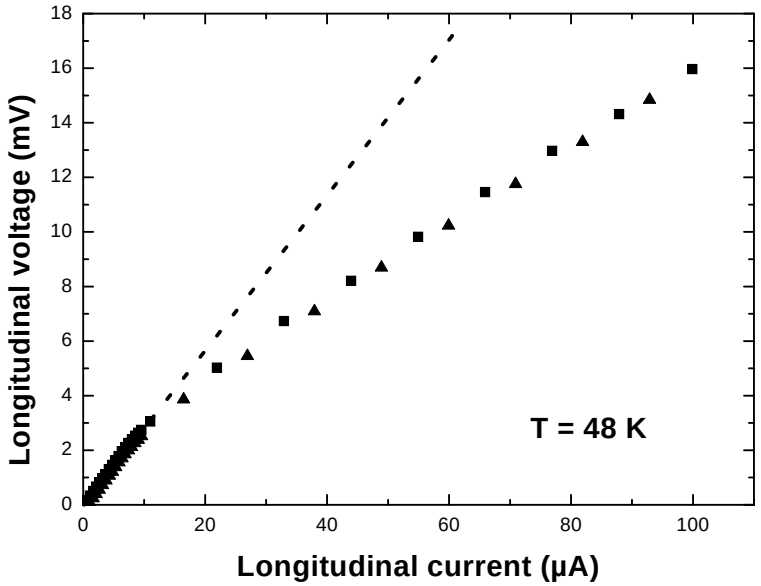


FIG. 3.10: Caractéristique I-V longitudinale à 48K. carré noir : $J_\perp = 0$ A/cm^2, triangle noir : $J_\perp = 2*10^4$ A/cm^2. La ligne en tiret montre la caractéristique I-V des électrons normaux seuls.

est injectée "longitudinalement".

$$J_{trans} = J_\perp \overrightarrow{u}_{trans} = J_\perp(cos\theta \overrightarrow{c} + sin\theta \overrightarrow{b}) \tag{3.3}$$

Comme le tenseur de conductivité n'est diagonal que le long des directions cristallographiques , nous avons :

$$E_c = \frac{J_\perp cos\theta}{\sigma_{xx}}, E_b = \frac{J_\perp sin\theta}{\sigma_{zz}} \tag{3.4}$$

Donc le champ supplémentaire le long de la direction "longitudinale" est au premier ordre en θ, et en considérant que $\sigma_{zz} >> \sigma_{xx}$:

$$E_{longi} = E_b cos\theta - E_c sin\theta \simeq -\frac{J_\perp \theta}{\sigma_{xx}} \tag{3.5}$$

Avec le MEB utilisé pour la lithographie, le défaut d'alignement est environ 0.5°. Donc, quand le champ transverse est très grand, la caractéristique I-V longitudinale est notablement décalée et ne peut pas être superposée à la caractéristique I-V avec $J_\perp$=0. A 48 K, pour une densité de courant transverse nominale de $2*10^4$ A/cm^2, le décalage en tension est estimé à environ -0.2 mV et nous avons mesuré un décalage de -259μV.

Cependant ce défaut d'alignement est moins important pour le dépiégeage car il ajoute un champ dans la direction $\overrightarrow{b}$ donné par l'équation 3.4 (remarquer que la conductivité transverse est remplacée par la conductivité longitudinale et que le signe est changé). Les calculs donnent que pour une densité de courant nominale de $2*10^4$ A/cm^2, la tension

supplémentaire dans la direction $\overrightarrow{b}$ est de 0,02 mV, tandis que le champ seuil est de 2,5 mV. Nous avons injecté jusqu'à 10^5 A/cm^2 et nous n'avons pas observé de réduction dramatique du champ seuil dans ce régime. Si nous corrigeons le décalage artificiel des caractéristiques I-V, nous constatons qu'elles sont toutes superposables et que le champ seuil est inchangé sauf près de T_p. Près des températures de transition T_p (où la tension de phase slip est faible), il apparaît une légère asymétrie entre le courant positif et négatif. Cette asymétrie ne peut être expliquée par la théorie de Radzihovski and Toner ou par des inhomogénéités d'injection (dans les mesures de Markovic *et al.* les courbes étaient symétriques). Cela est simplement dû au fait qu'une partie de l'échantillon est soumise à un champ additionnel qui aide le dépiégeage quand le champ longitudinal est dans le même sens.

Enfin, on pourrait craindre, que compte tenu de la géométrie de notre échantillon, c'est cette fois le courant longitudinal qui se répand dans la direction transverse. Cependant l'anisotropie joue maintenant en notre faveur et cette possible inhomogénéité d'injection longitudinale ne peut masquer l'effet du courant transverse.

3.3 Dépiégeage transverse

Bien qu'une ODC soit piégée par commensurabilité dans la direction transverse, Zawilski *et al.* [86] ont observé des effets non linéaires dans cette direction. Pour ce faire, ils avaient évaporé des contacts transverses sur des échantillons de Bronze Bleu, où les dimensions transverses sont grandes (plusieurs centaine de μm) et où des contacts lithographiés ne sont donc pas nécessaires. Ils observèrent une chute de la résistance de leurs échantillons et purent identifier un champ seuil relativement faible ($E_T < 1$ V/cm) pour une gamme de température allant de 30 à 120 K. Ces effets non linéaires furent attribués au fait que la conduction suivant la direction transverse ne se fait pas en ligne droite mais, en partie, suivant la direction longitudinale (voir figure 3.11). Ainsi, la conductivité apparente a une part longitudinale et la non-linéarité observée provient du dépiégeage de l'onde suivant la direction habituelle. En revanche, les raisons pour lesquelles le courant préférerait se déplacer ainsi restent assez floues. On peut, par exemple, avancer comme hypothèse que pour minimiser la résistance, les charges cherchent à passer d'un plan à un autre au niveau de défauts cristallins. De plus, il se peut également que leurs électrodes transverses n'étaient pas parfaitement alignées et que le courant injecté n'était pas dans la direction transverse au départ. Dans nos structures en H, la résistance transverse ne varie pas, même pour des champs allant jusqu'à quelques dizaines de Volts par centimètre. Comme les échantillons

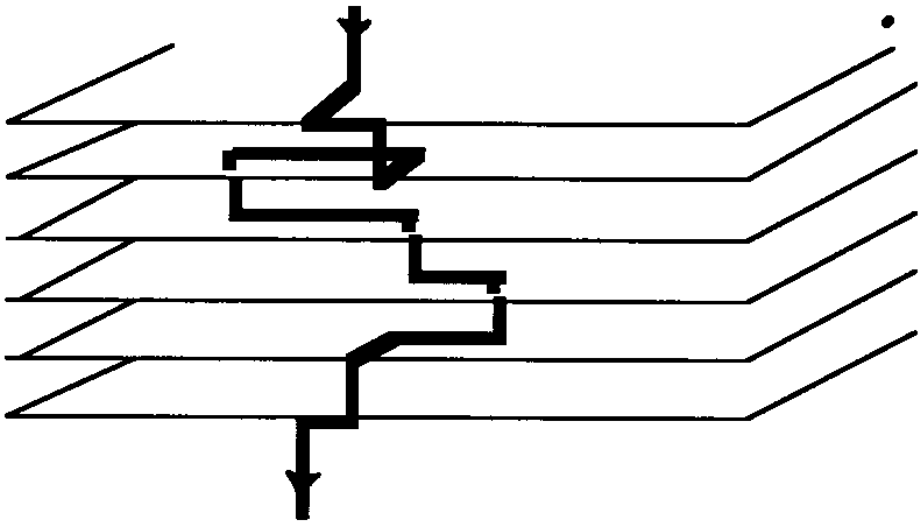


FIG. 3.11: Interprétation de la nonlinéarité transverse dans le bronze bleu. Le chemin de conduction (en trait épais) est le plus souvent dans les plans longitudinaux [86].

de $NbSe_3$ sont moins épais, ils comportent moins de défauts, il est alors normal selon l'interprétation précédente de ne pas observer de non-linéarité dans la direction transverse. Ceci confirme le fait que dans le bronze bleu, la non-linéarité transverse n'était sûrement pas due à un mouvement transverse de l'ODC.

3.4 Conclusion

A l'aide de simulations numériques, nous avons montré que les expériences précédentes sur le "current effect transistor" dans les ODC ne sont pas fiables à cause des inhomogénéités d'injection du courant transverse. Nous avons réalisé un échantillon de $NbSe_3$ avec une géométrie, où de telles inhomogénéités sont négligeables. Nous n'avons observé aucune réduction du champ seuil même pour des courants un ordre de grandeur plus élevés que ceux des expériences précédentes. La valeur du courant de crossover J_c est donc très grand comme calculé par Artemenko *et al.* De plus, notre échantillon nous a permis de mesurer directement les variations des résistances longitudinale et transverse en fonction de la température ainsi que l'anisotropie dans $NbSe_3$. Enfin, aucune non linéarité transverse ne fut observée, ce qui confirme que les mesures de Zawilski *et al.* [86] dans le bronze bleu étaient liées à des inhomogénéités de courant au cœur de leurs échantillons. En bref, ce chapitre illustre la difficulté des mesures mésoscopiques d'échantillons à ODC à cause de l'anisotropie de la conductivité qui conduit à des situations où le courant injecté n'est pas le même sur tout l'échantillon.

4

Impact des process de salle blanche sur une ODC

Ce chapitre présente un certain nombre de résultats expérimentaux obtenus sur des échantillons "génétiquement modifiés" par des procédés de salle blanche. Il est à l'image de l'état de la recherche en mésoscopie des ODC (qui est à ses débuts), c'est à dire qu'il explore diverses directions qui, le plus souvent, lui ont été soufflées par la mésoscopie traditionnelle. En revanche, il est encore difficile de pouvoir dégager des conclusions fermes quant aux mécanismes mis en jeu dans les échantillons étudiés.

4.1 Résistance négative

Le résultat le plus intriguant obtenu sur des échantillons mésoscopiques d'ODC est sûrement l'observation d'une résistance négative par le groupe de Delft [85]. Bien entendu, ce résultat peut paraître invraisemblable, puisque dans un conducteur ordinaire cela signifierait que l'échantillon dissipe une énergie négative, c'est à dire, qu'il se comporterait comme une source d'énergie d'origine inconnue. En fait, ceci n'est plus vrai lorsque deux types de courant circulent en parallèle dans le même échantillon.

L'expérience consiste à poser des échantillons de $NbSe_3$ ou de TaS_3 de section très petite $S \simeq 0{,}2\ \mu m^2$ sur des électrodes d'Au de 100 nm de large et très rapprochées (jusqu'à 300 nm voir figure 4.1). On injecte le courant aux extrémités de l'échantillon par de larges électrodes et la tension entre chaque petite électrode est mesurée par un voltmètre. Pour certaines paires d'électrodes, on observe que leur caractéristique est ohmique au départ, mais à partir d'un certain courant la résistance différentielle (*i.e.* la pente de la courbe I-V) devient négative. On a donc une diminution de la tension, alors que le courant total injecté augmente. Parfois, à fort courant, la tension et donc la résistance de l'échantillon peut même devenir négative. Les caractéristiques sont toujours asymétriques pour les paires d'électrodes présentant ce phénomène et les segments voisins présentent une non-linéarité moins prononcée.

Aucune interprétation convenable de ce phénomène n'a pu être fournie. Il est juste

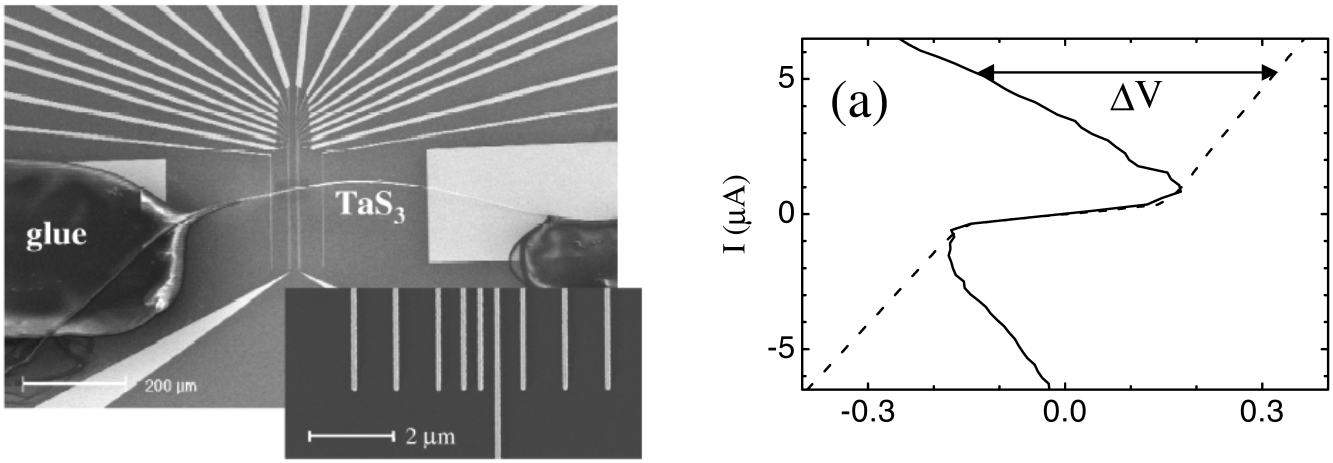


Fig. 4.1: A gauche : photographie d'un échantillon de TaS_3 posé sur des électrodes d'Au. L'espacement entre les gros plots (de courant) de part et d'autre de la figure est de 0,5 mm. L'encart montre un zoom comportant 9 contacts de tension de 100 nm de large. A droite : caractéristique I-V d'un échantillon de TaS_3 à 100K avec en trait plein la courbe mesurée et sa résistance négative et en pointillé une courbe de dépiégeage classique.

possible de rappeler que la tension négative mesurée comporte deux contributions : celle provenant du champ électrique et celle provenant du potentiel chimique des porteurs normaux. Une tension négative signifie donc que les porteurs circulent en sens inverse du courant total injecté, mais cela n'empêche pas l'onde de se déplacer dans le "bon" sens. En effet, nous savons (voir paragraphe 1.2) que l'onde est sensible au potentiel électrique et non au potentiel électrochimique. On peut donc imaginer que le champ électrique ne change pas de sens là où la différence de potentiel électrochimique change de signe. Dans les segments où la résistance est négative, les courants normaux et d'ODC circulent en sens inverse, mais le courant normal total reste le même que dans les autres segments (du fait du principe de conservation de la charge). Ainsi, une résistance négative n'est pas impossible en principe. Van der Zant *et al.* [85] ont alors évoqué qu'un défaut macroscopique pourrait changer le nombre de chaînes conductrices et diffuser en arrière (back scattering) les porteurs normaux alors que l'onde continuerait son chemin. Ceci ne serait possible que sur de faibles distances telles que celles mises en jeu ici (quelques centaines de nanomètres), car le champ électrique nécessaire pour créer une tension de phase slip et donc convertir l'onde serait trop grand.

Bref, leur explication reste assez vague et s'appuie sur le fait que les réactions de l'onde et des porteurs normaux face à un défaut diffèrent. Par des techniques d'irradiation ou de microfabrication, il est aisé de placer de manière contrôlée un défaut artificiel. Il est donc possible de vérifier l'hypothèse de Van der Zant *et al.* selon laquelle un défaut peut changer le signe de la résistance d'un échantillon à ODC.

4.2 Constriction dans des échantillons de $NbSe_3$

4.2.1 Réalisation

On sélectionne des échantillons d'épaisseur 0,2 μm comparable à celle des échantillons de l'expérience précédente que l'on dépose à plat sur du saphir ou du quartz. On dépose du collodion sur l'échantillon de telle manière qu'il ne reste qu'une zone de 200 μm de long non recouverte. On dépose alors de l'Or en masquant 100 μm de la zone non recouverte par le collodion. Celui-ci sert à adoucir le passage de marche pour les contacts électriques. Ensuite, l'échantillon est passé au FIB (voir paragraphe 2.4), où la microstructure ainsi que les contacts d'Au sont gravés. On peut voir figure 4.2 la forme typique des échantillons

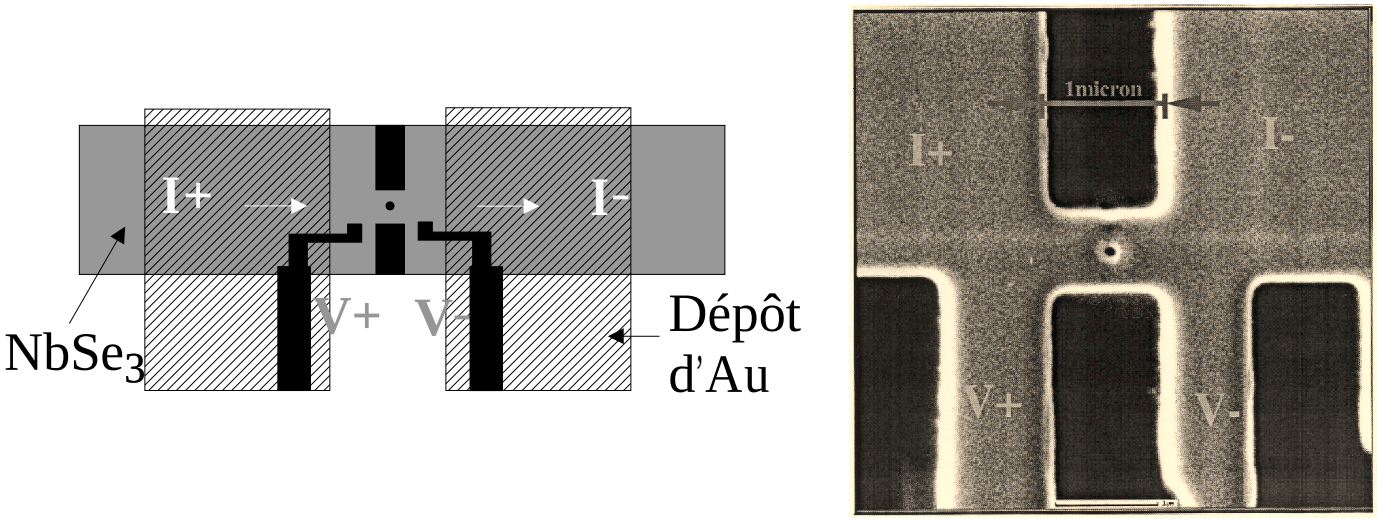


FIG. 4.2: A gauche : schéma de la constriction et du trou réalisé par FIB avec en hachuré le dépôt d'Or et en gris le ruban de $NbSe_3$. Les lignes noires sont les zones de $NbSe_3$ et d'Or gravées par le FIB. On voit que le FIB sépare ainsi chaque dépôt d'Au en deux électrodes (l'échelle n'est pas respectée). A droite : photographie par FIB zoomant le schéma précédent de l'échantillon de $NbSe_3$ après gravure.

étudiés. L'échantillon a pour largeur initiale une quarantaine de microns, que l'on ramène par gravure à un carré de 1 μm de côté afin de se rapprocher des dimensions de l'expérience de Van Der Zant. Cette constriction comporte deux amenées de courant et deux électrodes de tension. Compte tenu de la lenteur du processus de gravure, les contacts d'Au sont les plus petits possibles. On effectue ensuite des reprises de contact par "soudure froide" à l'In (*i.e.* on presse des morceaux d'Indium taillés en pointe) auxquels on raccorde des fils de Cuivre. Au milieu de cette constriction, nous avons creusé un trou de diamètre variable allant de 70 nm à 0,2 μm, ce qui permet d'étudier l'effet d'une large gamme de défauts sur le mouvement d'une ODC. Il est difficile de faire des trous uniformes plus petits par FIB à cause de l'épaisseur de l'échantillon. En effet, si on réduit le temps de gravure le trou devient conique, voire ne traverse pas complètement l'échantillon. Nous avons également

conçu des constrictions "témoins" ne comportant pas de trou.

4.2.2 Dispositif de mesure

Ce type d'échantillons avec constriction nous a posé de nombreux problèmes lors des mesures. En effet, ils étaient extrêmement sensibles aux décharges électrostatiques et une dizaine d'échantillons grillèrent comme des fusibles avant que notre système de mesures soit entièrement sécurisé. Il a fallu exclure tout usage du fer à souder et rattacher les fils de l'échantillon aux fils de mesure du cryostat par des connecteurs embrochables. De plus, l'échantillon doit être court-circuité avant de connecter un instrument de mesure aux fils du cryostat. Néanmoins, toutes ces précautions ne furent pas suffisantes, car certains échantillons étaient encore détruits pendant le refroidissement. Après quelques tâtonnements, il s'est avéré que cela provenait, d'une part des contacts d'In qui étaient trop petits et adhéraient mal à l'Au pendant les contractions dues au refroidissement et, d'autre part, à l'appareil de mesure de la résistance (pont détecteur multifonction) qui a le défaut de monter rapidement en tension jusqu'à 1 V, lorsqu'un contact de l'échantillon est perdu. C'est cette brusque montée en tension qui grillait la microstructure. Il a donc fallu fabriquer une boîte de protection qui permettait, soit de relier l'échantillon à la masse, soit de court-circuiter les électrodes de l'échantillon tout en le maintenant flottant, soit de relier chaque électrode à une diode reliée à la masse, ce qui permet d'évacuer les forts courants si le pont de mesure monte en tension, soit de ne pas protéger l'échantillon (lorsque la température ne varie plus, que tous les appareils sont allumés et que l'on souhaite effectuer des mesures précises).

4.2.3 Switching ou défauts d'irradiation

Après toutes ces précautions, nous avons pu étudier les propriétés de non-linéarité de ces échantillons. Nous avons d'abord constaté que nous n'observions pas de résistance négative et que les caractéristiques I-V entre un échantillon avec trou et un échantillon sans trou n'étaient pas spécialement différentes. En revanche, les caractéristiques sont assez différentes de celles d'échantillons macroscopiques. Pour de nombreux échantillons, le dépiégeage est très brutal et hystérétique (voir figure 4.3).

Un comportement semblable a déjà été observé dans $NbSe_3$ et est désigné par le terme "switching". Le switching a tout d'abord été observé sur certains échantillons de $NbSe_3$ à basses températures ($T < 38$ K) [87]. Le champ seuil pour I croissant est plus grand que celui pour I décroissant et le dépiégeage est brutal. De plus, des mesures avec deux

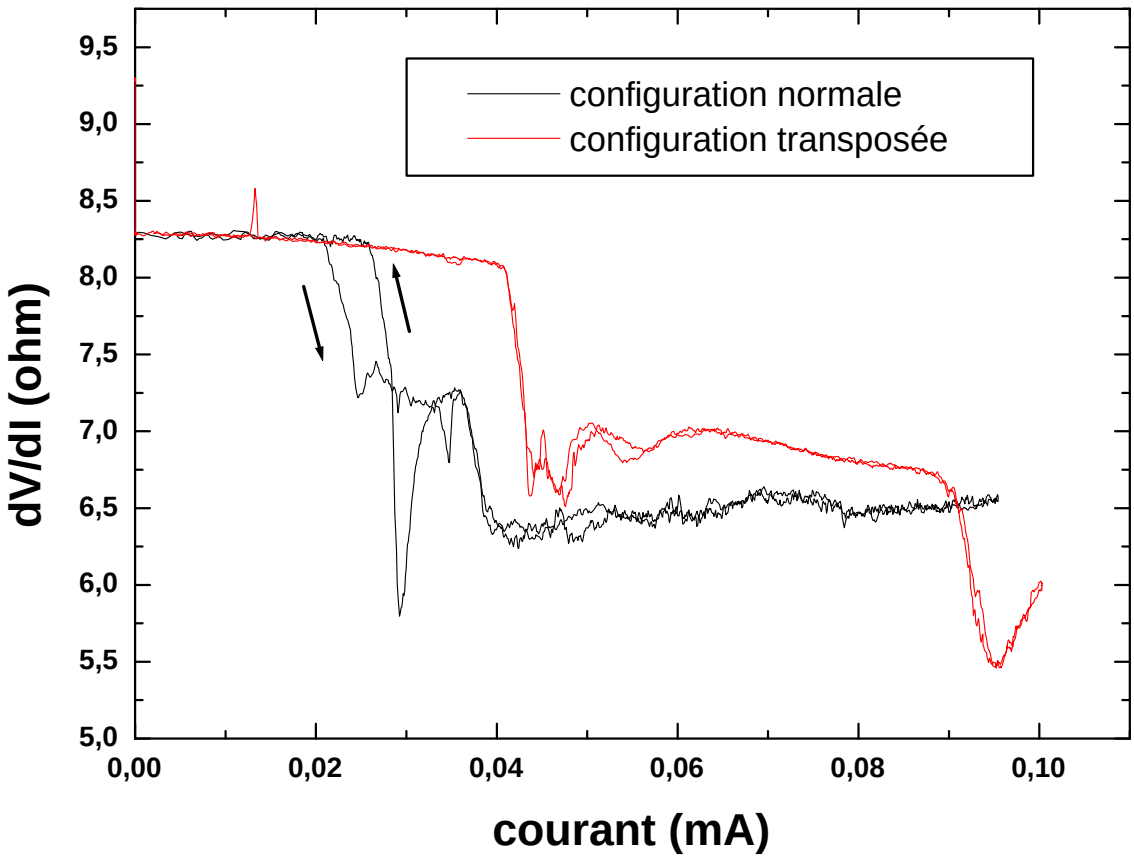


FIG. 4.3: Caractéristique dV/dI(I) d'une constriction dans $NbSe_3$ à T = 61 K.

contacts de tension mobiles ont montré que la source du switching provenait d'une zone de longueur inférieure à 20 μm. Si cette zone n'est pas comprise entre les deux contacts mobiles, il n'y a pas de switching même si l'un des contacts est très proche de la zone [26]. Ce résultat suggère qu'il existe une zone où l'ODC ne se comporte pas normalement. On peut noter que dans cette zone aucun défaut n'est visible au microscope optique à haute résolution. Ce phénomène fut remarquablement éclairci par une théorie de Inui *et al.* [28] qui étend le domaine de validité du modèle phénoménologique (voir paragraphe 1.2) en prenant en compte les variations de l'amplitude du paramètre d'ordre $|\Delta|$. Plus précisément, il considère que la constante de raideur dans le modèle phénoménologique dépend linéairement de $|\Delta|$ et donc s'annule par exemple lors d'un phase slip où $|\Delta| \to 0$ pour permettre à la phase de tourner de 2π. Le modèle est ensuite appliqué en considérant que les échantillons à switching sont constitués d'une zone de piégeage fort en interaction avec une zone de piégeage faible. La zone de piégeage fort est la zone de longueur inférieure à 20 μm, où la phase φ_0 est fixée modulo 2π par un défaut, et c'est la zone de piégeage faible où la phase est libre, qui peut faire sauter φ_0 de 2π pour minimiser l'énergie d'interaction élastique. Lorsque l'on met ceci en équation, on obtient bien le phénomène d'hystérésis observé.

Cependant, pour nos échantillons le phénomène d'hystérésis est inversé (le champ seuil à l'aller est plus faible qu'au retour) et les valeurs du champ seuil ne sont pas reproductibles, ce qui n'est pas possible selon le modèle de Inui *et al.* [28]. De plus, cet effet est observé à des températures bien au-dessus de celles où il a lieu habituellement dans $NbSe_3$. Des phénomènes d'hystérésis inversée ont déjà été observés dans des échantillons de Bronze Bleu irradiés [54]. On peut donc penser que le FIB irradie les échantillons pendant les périodes d'observation, mais que l'effet est dramatiquement aggravé. La nature exacte de ces défauts reste à être définie, car il n'affecte pas ou peu le RRR (égale ici à 20) alors que pour des échantillons irradiés, il peut être beaucoup plus faible. Enfin, le modèle de Inui *et al.* [28] n'explique pas tous les aspects expérimentaux et des expériences ont même montré qu'une zone de piégeage fort n'est peut-être pas l'unique raison du switching dans les ODC [35]. Le switching pourrait aussi marquer dans certains cas une transition entre un état rampant de l'onde (creep) et un était glissant.

Nous avons également constaté que les phénomènes d'hystérésis disparaissent lorsque l'on mesure l'échantillon en configuration transposée (voir figure 4.3). On est en configuration transposée lorsque sur l'échantillon de la figure 4.2, on injecte un courant continu entre V^+ et V^- et que l'on mesure la tension entre I^+ et I^-, alors que pour la configuration normale c'est le contraire (pour plus de détails sur les configurations normales et transposées voir le paragraphe 6.1.1). Cette disparition du switching dans cette configuration indique que c'est le passage de l'onde au niveau où la largeur de l'échantillon est réduite de 40 μm à 1 μm qui est sûrement la cause du switching. Une telle comparaison entre configurations normale et transposée est possible, car la résistance dans l'état ohmique (ODC piégée) est la même dans les deux configurations, signe que les problèmes d'inhomogénéités de courant sont étonnamment négligeables en configuration transposée. La résistance de l'échantillon en configuration transposée dans l'état où l'ODC est piégée, décroît légèrement lorsque I_{DC} augmente à cause des effets de chauffage, car les électrodes V^+ et V^- où l'on injecte le courant sont petites et dans la direction transverse, donc beaucoup plus résistives.

En bref, ces échantillons se caractérisent donc par de brusques sauts au dépiégeage dans les courbes I(V) ou dV/dI(I) en configuration normale ou transposée. La résistance est tellement instable que même dans l'état piégé, il est arrivé que la résistance de l'échantillon saute d'une dizaine à quelques centaines d'ohms, puis retourne à sa valeur initiale après un balayage en courant continu.

Enfin, certains échantillons ont des contacts de tension tellement résistifs qu'il était impossible d'équilibrer la quadrature du pont détecteur multifonction. Pour ces échantillons, nous avons observé une magnétorésistance négative (voir figure 4.4). Or, il est admis que

l'onde n'a pas de magnétorésistance (*i.e.* sa résistance est indépendante du champ magnétique appliqué) et que les porteurs normaux ont une magnétorésistance positive (*i.e.* la résistance des porteurs normaux augmente avec le champ magnétique) comme tous les conducteurs classiques. Une magnétorésistance négative a, certes, déjà été observé en matière condensée et peut être liée à différents phénomènes, mais reste assez rare et apparaît pour la première fois à notre connaissance dans $NbSe_3$.

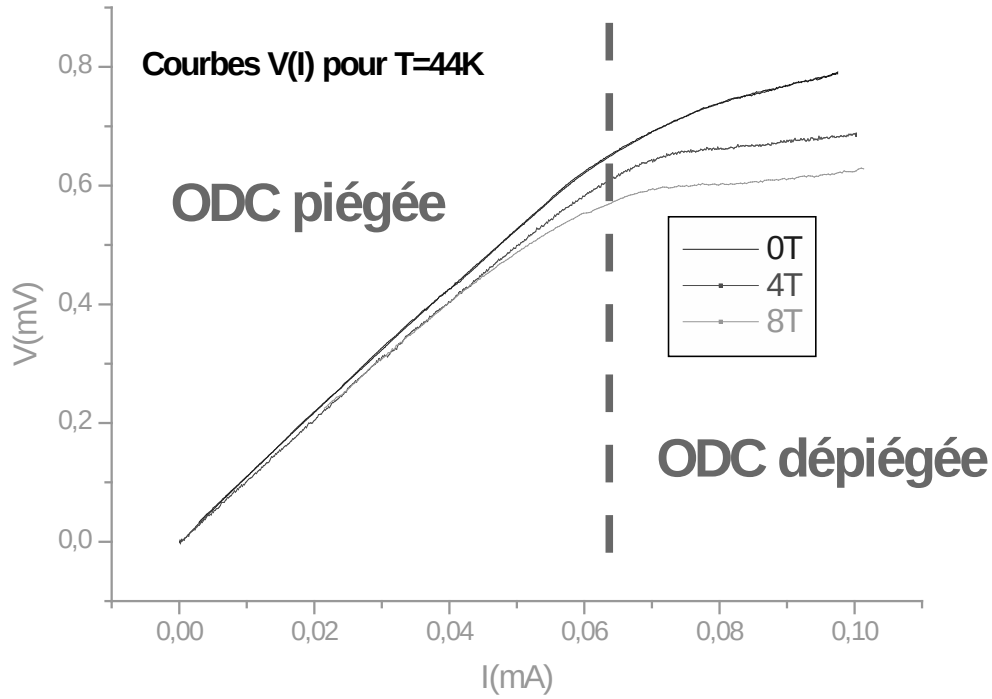


FIG. 4.4: Caractéristique I-V d'un échantillon réalisé par FIB présentant une magnétorésistance négative à T = 44K.

Ces effets de switching et de magnétorésistance négative ne sont pas absolument reproductibles d'un échantillon à l'autre alors que le procédé de fabrication semble *a priori* identique. Il nous a paru alors que les pollutions du FIB n'étaient peut-être pas la cause ou l'unique cause du comportement inhabituel de nos échantillons. En effet, nous étudions le transport sur des échantillons encadrés par des zones où la largeur de l'échantillon varie. En principe, la densité de courant étant plus faible dans la zone où la largeur de l'échantillon est plus grande, l'onde doit y être piégée. Mais il n'est pas impossible que des inhomogénéités de courant au niveau du goulet d'étranglement provoquent des phase slips qui puissent perturber le mouvement de l'onde et l'équilibre entre les porteurs normaux et l'ODC.

4.2.4 *Influence d'une constriction*

Nous avons alors entrepris de faire un échantillon composé d'une partie la plus proche possible d'une constriction et d'une autre éloignée des constrictions (voir figure 4.5 à gauche). Les deux parties sont séparées de 15 μm. Pour éviter les problèmes provenant

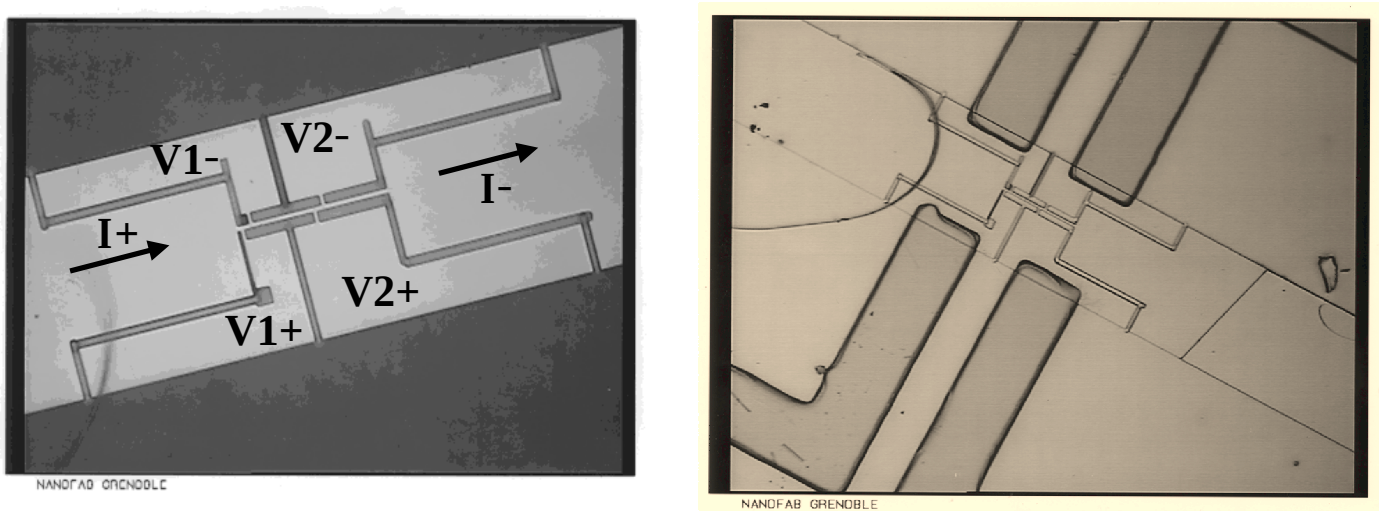


Fig. 4.5: A gauche : photographie au microscope optique à haute résolution d'un échantillon de $NbSe_3$ gravé par FIB. On peut voir un canal de 1 micron de large et d'une trentaine de microns de long avec ses deux électrodes d'injection de courant (à gauche et à droite) et ses quatre électrodes de tension (deux en haut et deux en bas). A droite : Photographie au microscope optique à haute résolution de l'échantillon après lithographie des contacts d'Au. On peut voir quatre dépôts d'Au qui connectent les quatre électrodes de tension de l'échantillon.

des contacts d'In, nous avons lithographié, par le procédé décrit au paragraphe 2.3.2, des contacts d'Au que nous avons ensuite microsoudés (voir figure 4.5 à droite).

Nos mesures ont montré que la magnétorésistance des deux parties étaient positives. Il semble donc que la magnétorésistance négative des échantillons précédents soit liée à une manipulation inhabituelle du FIB qui modifierait les propriétés des porteurs normaux.

En revanche, les comportements en transport des deux parties se distinguent nettement. La partie éloignée des constrictions présente un comportement habituel, alors que les courbes I-V de l'autre partie, bien que ne présentant pas de switching à proprement parlé, montre une bistabilité. Cette bistabilité est grandissante lorsque l'on se rapproche de T_{p2} ou lorsque l'on augmente un champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan du ruban. Elle se caractérise (voir figure 4.6) par des sauts de tension de polarité indépendante du sens du courant continu injecté, comme si des porteurs avaient une direction privilégiée de déplacement. A plus basses températures ou à plus fort courant, les sauts de tension disparaissent et une mesure de la résistance différentielle devient possible. On constate alors, par exemple à T = 35 K, que les courbes sont asymétriques vis-à-vis du signe

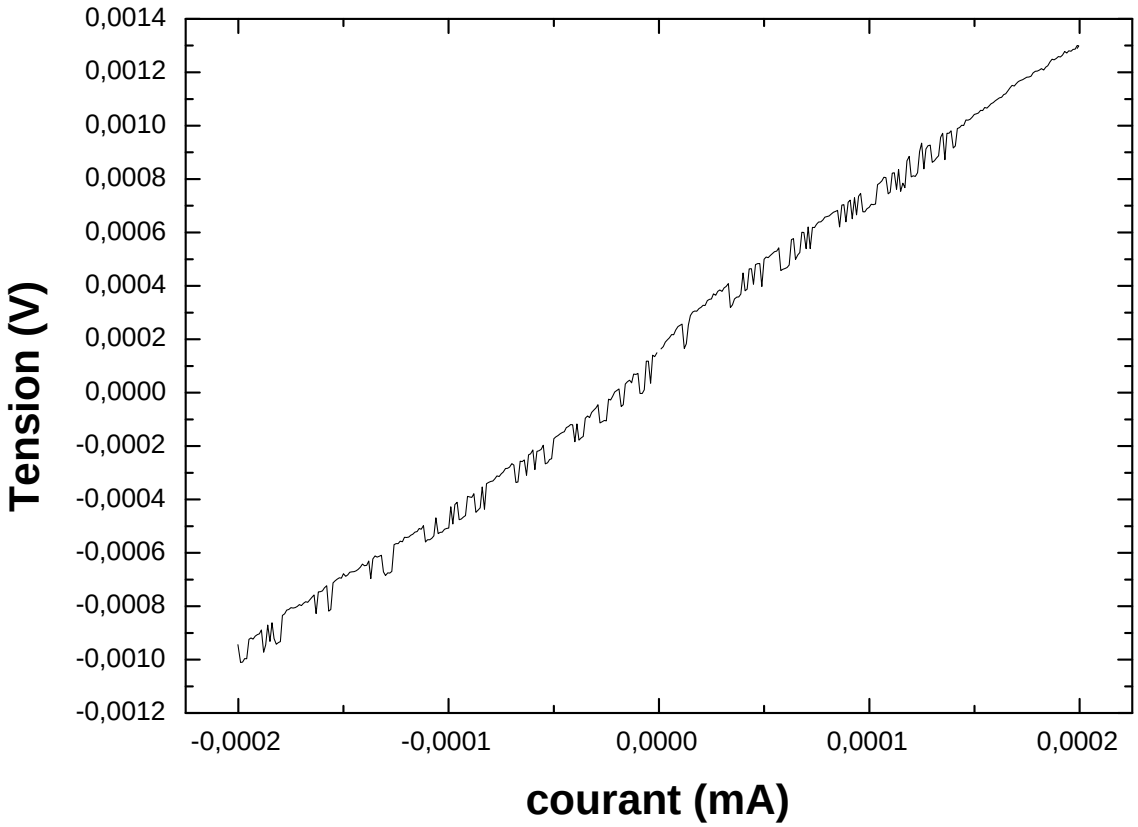


FIG. 4.6: Caractéristique I-V d'une zone proche d'une constriction pour T = 55 K.

du courant (voir figure 4.7). Pour un courant positif la résistance différentielle baisse légèrement à partir de 20 μA (indiqué par une flèche vers le bas), puis chute à partir de 50 μA, alors que pour un courant négatif la résistance différentielle augmente à partir de -20 μA (indiqué par une flèche vers le haut) avant de chuter vers 50 μA. Là encore, à faible courant quelque chose favorise la conduction dans un sens du courant. Cette asymétrie vis-à-vis du sens du courant provient sûrement de l'asymétrie dans la conception de la microstructure, car d'un côté la largeur de l'échantillon est homogène alors que de l'autre le courant est confronté à une constriction. Il y a donc bien un effet de la constriction sur l'onde. Le fait qu'il n'y ait pas de switching provient peut-être du fait que cette fois-ci l'échantillon n'est proche que d'une seule constriction et que c'est l'interférence de deux phase slips qui provoquerait les hystérésis. Le rôle de la constriction nécessiterait toutefois d'être étudié plus en détails, en augmentant le nombre d'électrodes de part et d'autre du rétrécissement.

4.2.5 Interférence

Nous avons également cherché à voir si l'onde circulant dans une partie de l'échantillon pouvait interférer avec l'onde dans l'autre partie. L'expérience consiste à faire varier le

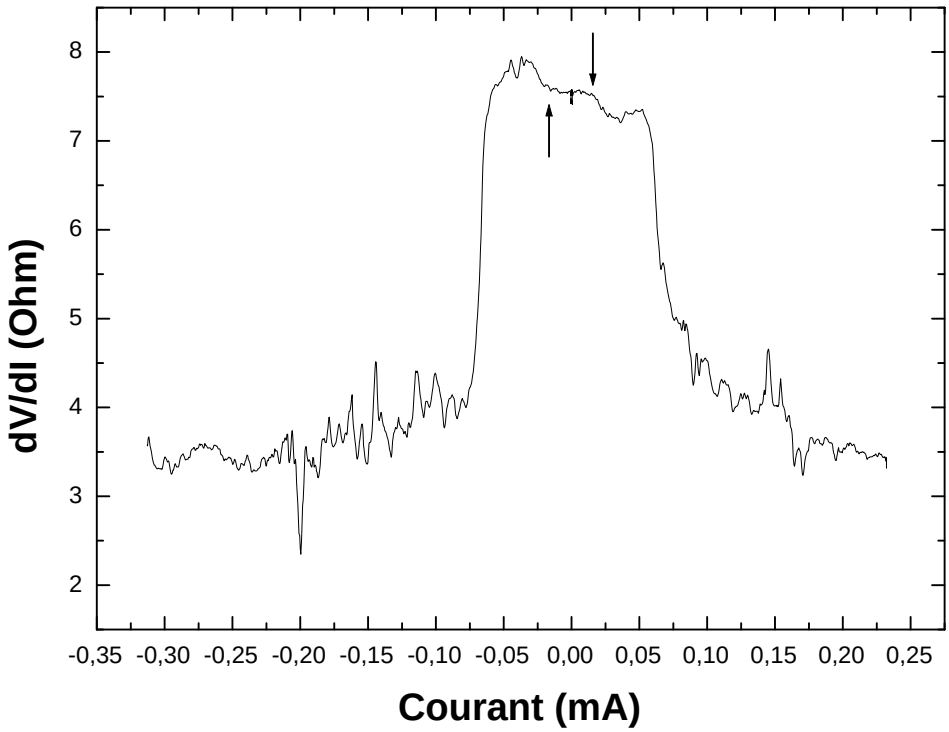


Fig. 4.7: Caractéristique dV/dI(I) d'une zone proche d'une constriction à T = 35K.

courant circulant dans une partie pendant que dans l'autre partie, où l'onde est préalablement dépiégée, on cherche à détecter des sortes de Shapiro steps (*i.e.* une interférence entre le NBN d'une onde avec des harmoniques du NBN de l'autre onde). Cependant, aucun signe d'interférence n'est apparu, ni même le phénomène d'accrochage dont nous parlerons au paragraphe 6.1.2.

4.2.6 Oscillation sous champ magnétique

Des mesures sous champ magnétique d'échantillons de $NbSe_3$ irradiés aux ions lourds ont montré des oscillations périodiques de résistance attribuées à un effet Aharonov/Bohm du condensat de l'ODC [83, 2]. Cependant, la difficulté d'observer ces oscillations (uniquement sur des échantillons purs, peu épais et pour des courants continus proches du courant seuil), l'absence de telles oscillations dans TaS_3 ou le fait que la périodicité des oscillations soit en h/2e alors que les trous sont répartis aléatoirement, invitent à reconsidérer cette interprétation. Nous avons tenté de reproduire ces oscillations, soit à l'aide d'échantillons préparés dans les mêmes conditions d'irradiation aux ions lourds que dans la référence

[83], soit avec des échantillons gravés au FIB et en supposant que le FIB implante des ions Ga. Un ion lourd contrairement à l'implantation de Ga, traverse l'échantillon dans le sens de l'épaisseur et fait fondre la réseau cristallin sur son passage, laissant derrière lui un défaut colonnaire de matière amorphe et de diamètre (une dizaine de nanomètres) supérieur à la longueur de cohérence d'amplitude. Des mesures à l'AFM ont montré que la surface de l'échantillon était intacte alors que des mesures au TEM sur des bords très fins de l'échantillon ont permis de clairement visualiser les défauts dus à l'irradiation.

L'effet Aharonov/Bohm est possible, si on considère que l'onde conserve sa cohérence en passant "au travers de ce trou", où plus précisément il faut supposer que le défaut a créé, de part et d'autre du défaut, deux chemins cohérents possibles pour contourner le défaut. Sous champ magnétique, la phase de l'onde passant par un des deux chemins varie différemment de la phase par l'autre chemin. On peut voir cela naïvement en considérant que le champ magnétique crée un tourbillon autour du défaut et que l'onde passant d'un côté du défaut avance dans le sens du tourbillon alors que celle passant de l'autre côté avance à contre sens. Lorsque les deux parties de la même onde se rejoignent, il y a un déphasage et donc des interférences qui influent sur la conductivité de l'onde suivant que le déphasage est constructif ou destructif. On pourra noter que ce modèle ne marche que si ce sont deux parties d'une MÊME onde qui se rejoignent, c'est à dire, qu'il faut qu'il y ait cohérence de l'amplitude. De plus, il faut bien sûr que l'onde soit en mouvement (*i.e.* dépiégée) et qu'avant le champ seuil, il n'y ait pas d'oscillations Aharonov/Bohm.

La période de ces oscillations ΔH est donnée par la formule :

$$\Delta H = \frac{h}{2e} \times \frac{4}{\pi D^2} \tag{4.1}$$

où D est le diamètre du défaut colonnaire, h la constante de Planck et e la charge de l'électron. On obtient typiquement $\Delta H = 10T$, sachant que nous avons accès à un champ magnétique maximum de 29 T. En outre, il s'est avéré que le diamètre des trous diminuait sur des échelles de temps de l'ordre du mois à cause d'effets de recristallisation. Il est donc important de mesurer le diamètre des trous peu de temps après avoir mesuré les oscillations sous champ. Il faut aussi que les échantillons soient irradiés peu de temps avant les mesures car plus le diamètre du défaut est petit, plus la période augmente et devient inaccessible expérimentalement.

Nos mesures ont bien révélé des oscillations de la résistance dépiégée sous champ magnétique mais non-périodiques. Ces oscillations sont assez reproductibles d'une montée de champ à l'autre et restent stables sur une certaine plage de courant proche du champ seuil (voir figure 4.8). En revanche, elles peuvent complètement disparaître lorsque l'on ramène

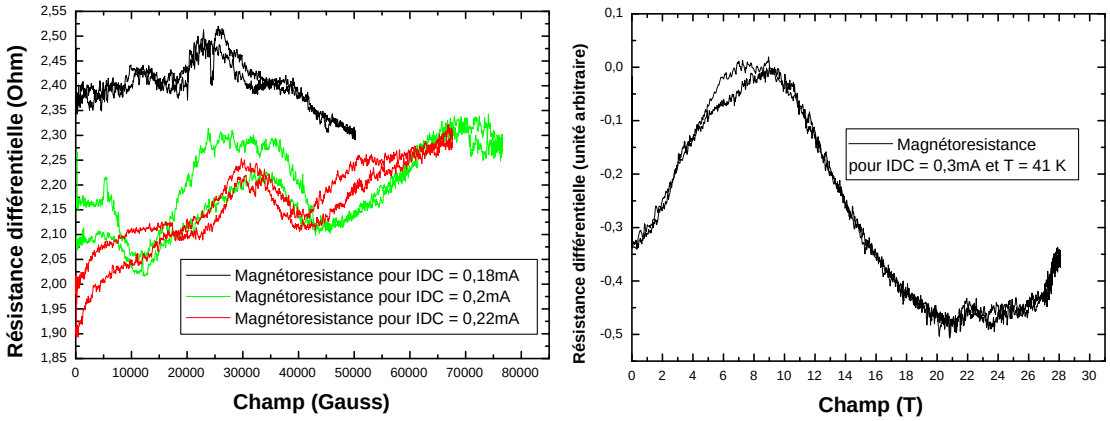


Fig. 4.8: A gauche : variation de la résistance différentielle d'un échantillon de $NbSe_3$, réalisé par FIB en fonction du champ magnétique à T = 50 K pour différents courants continus. A droite : variation de la résistance différentielle d'un échantillon de $NbSe_3$ irradié aux ions lourds à T = 41 K et pour un courant continu I_{DC} = 0,3 mA.

le courant à zéro, puis, que l'on retourne au même courant. Il semblerait donc qu'elles soient liées à des états métastables de l'onde. Il est difficile de savoir si c'est l'onde qui oscille par effet Aharonov/Bohm, par exemple, mais que la cohérence est brouillée par les nombreux degrés de liberté de l'ODC, ou si ce sont les porteurs normaux qui oscillent sous l'effet d'états métastables de l'onde de la même manière que les états métastables de l'onde translatent les oscillations quantiques des poches de porteurs non condensés à très basses températures [67].

4.3 *Variation de la température de transition*

Il existe de nombreux moyens de faire varier la température de transition T_p d'un matériau. L'enjeu, surtout pour la supraconductivité, est de pouvoir étudier voir d'utiliser ces matériaux à des températures ne nécessitant pas de liquides cryogéniques. Dans $NbSe_3$, il est connu depuis longtemps que la pression peut diminuer la T_p et même supprimer l'ODC. On peut aussi remarquer que suivant le procédé de synthèse la T_p de l'onde HT peut également varier (T_p = 145 K pour les échantillons fabriqués à Cornell et T_p = 143 K pour les échantillons fabriqués à Lausanne).

Latyshev *et al.* [32] remarquèrent que l'amincissement par RIE pouvait augmenter la T_p dans $NbSe_3$ (voir figure 4.9). Ils attribuèrent ceci à un changement du spectre de phonons avec l'épaisseur de l'échantillon qui provoquerait une augmentation du couplage électron-phonon comme pour les effets de taille dans les supraconducteurs. Leur mesure

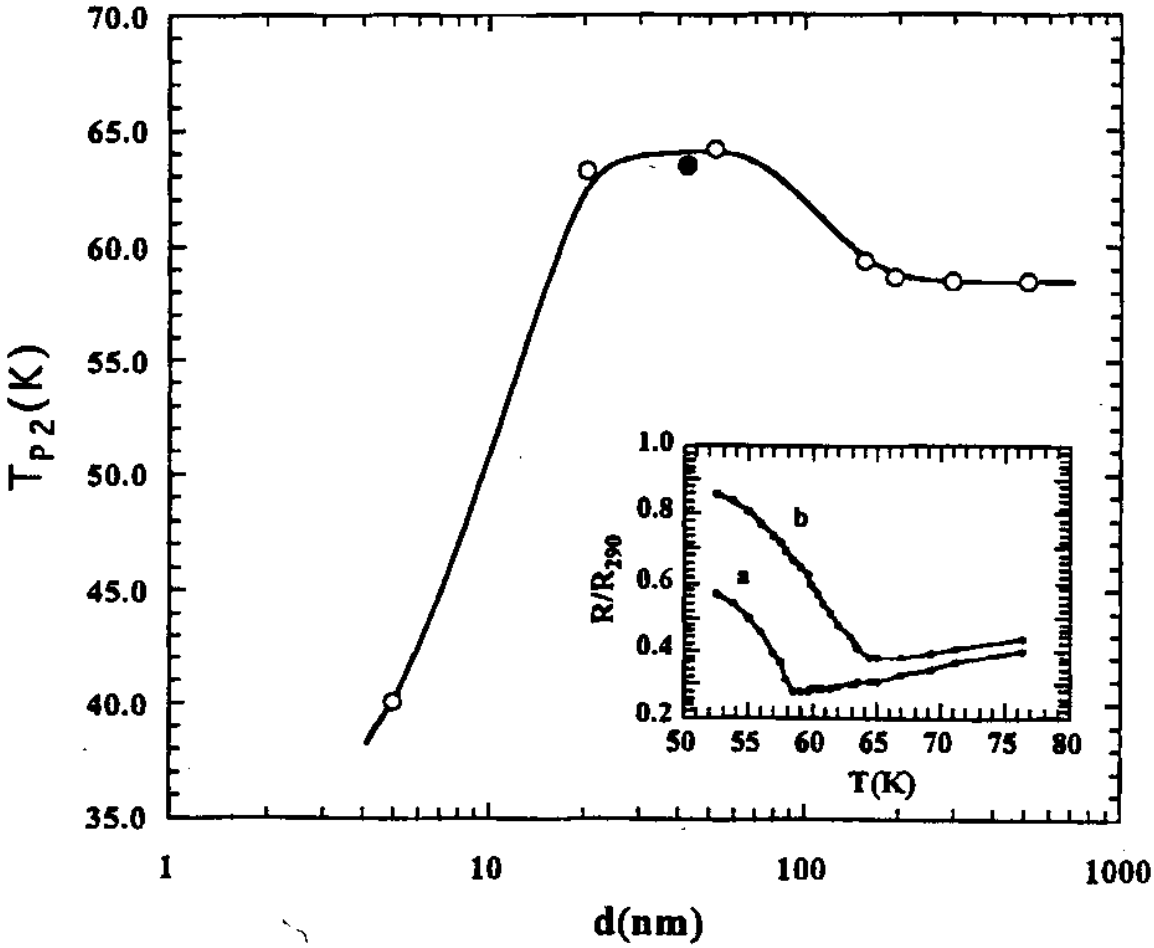


FIG. 4.9: Variation de la température de transition de l'onde BT dans $NbSe_3$ en fonction de l'épaisseur d'un échantillon, selon la référence [32]. Les ronds creux indiquent les points correspondant à un même échantillon gravé par RIE SF6, alors que le rond plein indique le point correspondant à un échantillon gravé par Ar. En encart : variation de la résistance d'un même échantillon en fonction de la température avant et après gravure.

consiste à graver un échantillon par RIE SF6, à mesurer sa résistance à l'ambiante pour en déduire l'épaisseur gravée, puis à descendre en température pour déterminer T_{p2}. Selon ces mesures, T_p ne varie pas tant que l'épaisseur de l'échantillon est supérieure à 200-300 nm. Pour une épaisseur autour de 40 nm, T_p augmente jusqu'à 5 K, puis chute pour une épaisseur inférieure à la longueur de cohérence transverse. Pour prouver que cet effet n'est pas dû à une réaction chimique, le SF6 fut remplacé par un gaz neutre (Ar) montrant également une augmentation de T_p.

Cette variation de T_p par RIE ouvre des perspectives de réalisation de jonctions normale/ODC mésocopiques. En effet, les techniques de lithographie permettent de faire des masques tels que la RIE ne grave que des petites zones de l'échantillon. On peut alors imaginer de réaliser un échantillon qui suivant les endroits aurait des températures de

transition différentes (T_p et $T_{p'}$). Ainsi pour une température comprise entre T_p et $T_{p'}$, certaines zones de cet échantillon auront transitées, tandis que d'autres seront encore normales, formant ainsi une jonction normale/ODC. Cependant, devoir atteindre de manière contrôlée une épaisseur de 40 nm est assez rédhibitoire. C'est pourquoi, nous avons tenté de trouver des conditions d'augmentation de T_p plus accessibles.

Tout d'abord, il s'est avéré que la valeur absolue de l'épaisseur n'était pas le paramètre clef. En effet, déjà quand on regarde une expérience de Latyshev *et al.* [33] sur des échantillons comportant des réseaux de trous, on constate que la T_p de leurs échantillons a varié alors que l'échantillon est plus épais que 200 nm. De plus, nous avons effectué une étude plus détaillée des effets de la RIE sur $NbSe_3$ et nous avons vu que partant, par exemple, d'un échantillon d'épaisseur 1,4 μm, la T_p est shiftée de 3 K après une gravure de deux minutes en RIE SF6 (voir figure 4.10) alors qu'il n'a perdu que 0,1 μm. L'épaisseur des

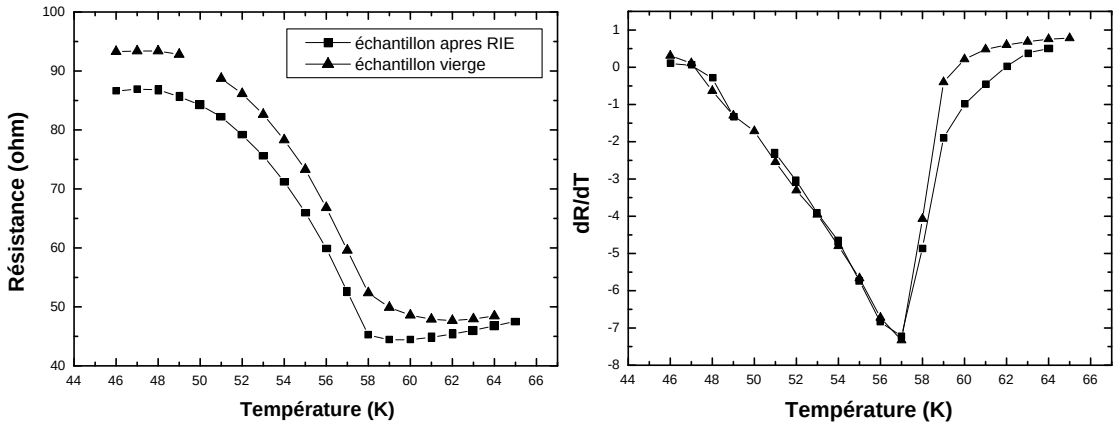


Fig. 4.10: Augmentation de la température de transition dans $NbSe_3$. A gauche : variation de la résistance du même échantillon avant (triangle noir) et après (carré noir) RIE en fonction de la température. A droite : variation de la dérivée de la résistance de cet échantillon par rapport à la température en fonction de la température.

échantillons est dans notre cas mesurée directement à l'aide d'un profilomètre alors que pour Latyshev, elle était déduite. C'est sûrement ce dernier point qui explique notre désaccord avec les mesures de Latyshev. En effet, déduire l'épaisseur d'un échantillon à l'aide d'une mesure de résistance suppose que la largeur, la longueur et surtout la résistivité sont constantes après RIE. Or, en mesurant en 4 fils, nous avons remarqué que lorsque T_p augmente de 3 K, la RRR passe de 160 à 120 (soit une baisse de 25 %) signe que la résistivité de l'échantillon et donc le désordre augmente nettement après gravure. Ainsi, Latyshev sous-estime la résistivité et donc l'épaisseur de ses échantillons.

On pourrait alors imaginer que c'est le temps de gravure qui gouverne l'augmentation

de T_p. Néanmoins, nous avons noté qu'il fallait un temps de gravure variable suivant les échantillons avant que T_p varie. Au cours de ce premier temps, l'épaisseur de l'échantillon est constante et la RIE doit sûrement décaper la couche d'oxyde en surface. On pourrait envisager que c'est la radio-fréquence qui fait varier T_p en ordonnant les chaînes de conduction de l'échantillon. Cependant, il est difficile d'imaginer qu'une barrière de surface puisse empêcher les ondes électromagnétiques de pénétrer dans l'échantillon et l'augmentation de la résitivité indique que l'échantillon se dégrade.

Il semble donc plus plausible que la RIE implante en profondeur l'échantillon ou bien qu'elle grave profondément en passant entre les chaînes et découple ainsi les canaux de conduction. L'implantation se fait probablement sur des épaisseurs de l'ordre du micron car pour des échantillons trop épais (*i.e.* d'épaisseur de l'ordre de 10 μm), T_p ne varie pas quand l'épaisseur commence à baisser. On peut noter que la RIE n'est pas l'unique moyen d'augmenter T_p, car les échantillons réalisés par FIB montrent aussi une variation de T_p et nous avons déjà eu un échantillon où T_p avait augmenté alors qu'il n'avait subi qu'une évaporation d'Au et une gravure humide au KI.

Enfin, nous avons constaté que le changement de T_p ne s'accompagne pas d'un changement de la températutre du point d'inflexion de la courbe R(T) (voir figure 4.10) alors que pour certains, c'est cette température qui définit la transition de phase. Le fait que le point d'inflexion ne change pas semble indiquer que la RIE élargit la gamme de température sur laquelle la transition a lieu et sature plutôt qu'elle ne translate la transition. Néanmoins, il nous a été possible de dépiéger une ODC jusqu'à des température de 64 K avec un champ seuil très net. Le transport d'ODC pour cette gamme de températures est donc bien possible.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu qu'il apparaissait de nouveaux phénomènes à l'échelle mésoscopique (résistance négative, nouveau type de switching), mais qu'il est difficile d'exclure des perturbations provenant du process de microfabrication dans ces changements de comportements. Notamment, on peut souvent craindre que ces process induisent des défauts dans les échantillons. Nous avons aussi vu qu'il était assez aisé de changer la température de transition d'échantillons de $NbSe_3$, ce qui ouvre la voie vers l'élaboration de jonctions ODC/normale. Cependant, maintenant, il semble qu'il y ait tellement de moyens de changer T_p (KI, RIE ou FIB qui sont des passages plus ou moins obligés de tout process de microfabrication) que le problème est plutôt de trouver comment protéger certaines

parties de l'échantillon pour que leur T_p ne varie pas !

5

Cohérence spatiale et cohérence temporelle dans les ODC

L'objet de ce chapitre est de rapprocher les phénomènes de cohérence spatiale d'une ODC (*i.e.* la distorsion périodique du réseau vue au début du chapitre 1) observable par diffraction aux rayons X, des phénomènes de cohérence temporelle de l'onde (tel que le NBN et les Shapiro steps décrits au paragraphe 1.1) observables par mesures de transport.

5.1 Méthode expérimentale d'étude de la struture d'une ODC

5.1.1 Rappels

Nous avons vu que dans les matériaux à ODC, l'apparition d'une charge modulée est toujours accompagnée d'une surmodulation du réseau cristallin. C'est à dire qu'on a également une transition structurale displacive, où les noeuds de la maille (u,v,w) avec u,v et w des entiers relatifs, subissent un déplacement :

$$\overrightarrow{U}_{uvw} = \overrightarrow{R}_{uvw} + \overrightarrow{t}\sin(2\pi\overrightarrow{Q}\cdot\overrightarrow{R}_{uvw} + \varphi) \tag{5.1}$$

avec $\overrightarrow{R}_{uvw} = u\overrightarrow{a} + v\overrightarrow{b} + w\overrightarrow{c}$ les vecteurs de l'espace direct du cristal avant transition, $\overrightarrow{t}$ le vecteur de déplacement maximal des atomes dans l'espace direct (il est parallèle à $\overrightarrow{b}$ pour la première transition dans $NbSe_3$) et $\overrightarrow{Q} = 2\overrightarrow{k}_F$ le vecteur de surmodulation dans l'espace réciproque.

La densité de noeuds sera alors :

$$S(\overrightarrow{r}) = \sum_{u,v,w}\delta(\overrightarrow{r} - \overrightarrow{U}_{uvw}) \tag{5.2}$$

Sa transformée de Fourier, donnant les vecteurs d'onde $\overrightarrow{s}$ des pics dans l'espace réciproque s'exprime :

$$F(\overrightarrow{s}) = \int S(\overrightarrow{r})e^{-2i\pi\overrightarrow{s}\cdot\overrightarrow{r}}d\overrightarrow{r} \tag{5.3}$$

$$= \sum_{uvw} e^{-2i\pi\overrightarrow{s}\cdot\overrightarrow{R}_{uvw} + \overrightarrow{t}\sin(2\pi\overrightarrow{Q}\cdot\overrightarrow{R}_{uvw}+\varphi)} \tag{5.4}$$

En utilisant la formule de Jacobi-Anger :

$$e^{iz\sin\theta} = \sum_m J_m(z)e^{-im\theta} \tag{5.5}$$

où les fonctions $J_m(z)$ sont les fonctions de Bessel, on trouve :

$$F(\overrightarrow{s}) = \sum_m J_m(2\pi\overrightarrow{s}\cdot\overrightarrow{t})e^{-im\varphi}\sum_{uvw} e^{-2i\pi(\overrightarrow{s}+m\overrightarrow{Q})\cdot\overrightarrow{R}_{uvw}} \tag{5.6}$$

la deuxième somme est non nulle si $\overrightarrow{s}+m\overrightarrow{Q}$ appartient au réseau réciproque avant la transition, donc si $\overrightarrow{s} = h\overrightarrow{a^*}+k\overrightarrow{b^*}+l\overrightarrow{c^*}-m\overrightarrow{Q}$ avec m $\in \mathbb{Z}$.

Ainsi, chaque pic de Bragg est accompagné de plusieurs pics satellites espacés de Q (voir figure 5.1). Ces pics satellites, étant liés au condensat par l'interaction électron-phonon de l'équation 1.10, ils doivent sûrement réagir lorsque l'ODC subit de brusques changements tels que, sa mise en mouvement. Les mesures de diffraction par rayons-X peuvent devenir,

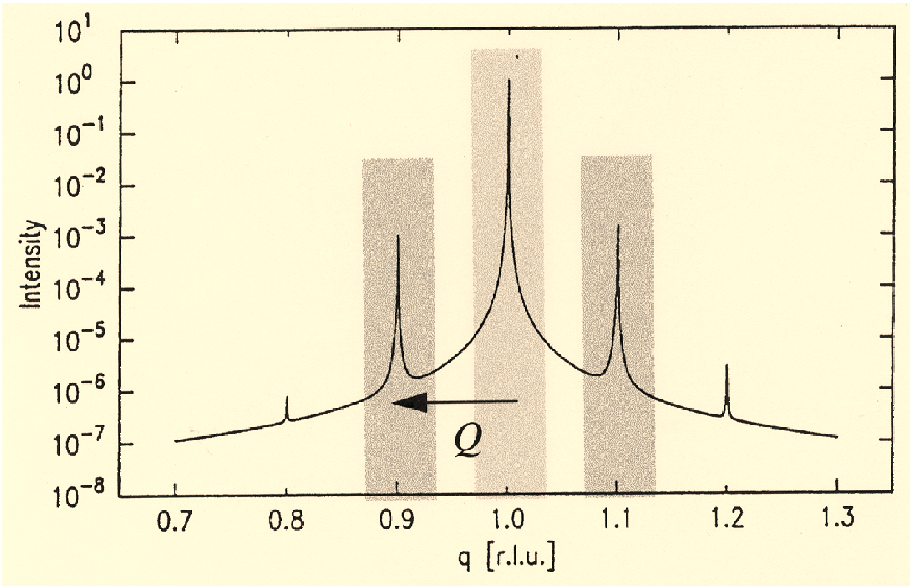


Fig. 5.1: Variation de l'intensité diffractée en fonction de la position dans l'espace réciproque. Le pic de Bragg est au centre de la figure (en gris clair). On peut voir ensuite les pics satellites au premier ordre (en gris foncé) et ceux moins intenses au deuxième ordre.

ainsi, un nouvel outil d'investigation des propriétés de transport dans les ODC au même titre que la diffraction des neutrons permet d'étudier les propriétés de transport des vortex.

5.1.2 Dispositif expérimental à l'ESRF

Des mesures couplées transport / Rayons X dans les ODC n'ont été effectuées pour l'instant qu'avec $NbSe_3$. A cause des symétries du cristal ($P2_1/m$), une tache de Bragg sur

2 dans la direction (0,k,0) est éteinte (pour k impair). Nous avons alors choisi d'observer la (0,2,0) pour se repérer dans le réseau réciproque et pour connaître la qualité du cristal, puis la (0,1+Q,0) pour étudier le satellite sans être gênés par la (0,1,0). Comme ce pic satellite est 1000 fois moins intense que le pic de Bragg et, comme les effets du champ électrique sur la position du satellite sont de l'ordre de 10^{-4}, il faut un faisceau très brillant et très peu divergent. L'usage d'un synchrotron tel que l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) est donc nécessaire. Le scan d'un pic ne prend alors que quelques secondes mais il y a des risques d'endommager le cristal par irradiation. Les pics sont alors déformés, moins intenses et le champ seuil de l'onde augmente. Si l'irradiation n'est pas trop longue, il est possible de faire disparaître ces défauts par recuit, en augmentant la température au dessus de la transition de Peierls.

Pour changer la température, on place l'échantillon dans un displex. Les displex sont des cryostats très utilisés en spectroscopie ou en diffraction car il ne nécessite pas d'entourer l'échantillon avec un bain d'Hélium. Ils sont constitués d'un circuit fermé d'Hélium gazeux sous haute pression et peuvent atteindre 30 K (dans notre cas), voire 4.2 K pour d'autres modèles. Un compresseur d'Hélium fournit le gaz sous haute pression au cryostat (cryocooler) par l'intermédiaire de tubes flexibles. La détente du gaz dans un soufflet au dessus de l'échantillon dans le cryocooler produit le froid. Le gaz basse pression retourne au compresseur par un autre tube pour être recyclé tandis que le froid est conduit par un support en cuivre jusqu'à l'échantillon qui est placé sous vide. La température est mesurée par un thermomètre de platine de RRR $>$ 1000 et contrôlée par un TRMC 2 (le régulateur du CRTBT) qui fait varier la puissance dissipée dans une résistance chauffante. L'avantage du displex est qu'une fois monté avec l'échantillon sur le diffractomètre, il est possible de faire l'alignement à l'air libre (c'est à dire en voyant l'échantillon) ; puis lorsque l'on doit faire le vide autour de l'échantillon pour enclencher le compresseur et démarrer le refroidissement, il suffit de fermer le diplex à l'aide d'une fenêtre de Beryllium sans bouger l'échantillon et donc sans perdre l'alignement.

5.2 Bref horizon des mesures couplées transport/Rayons-X

Les mesures couplées de structure et de transport ont tout d'abord été menées pour étudier les processus de conversion électron / ODC dus aux électrodes d'injection de courant ou aux défauts cristallins. Il est apparu que la position du satellite (voir les figures 5.2, 1.11 et les références [10, 65, 13]) et donc la période de l'onde change au niveau des électrodes après le dépiégeage, alors que les pics de Bragg restent inchangés. Il apparut

également qu'un gros défaut cristallin occasionnait le même type de déformations [68]. En

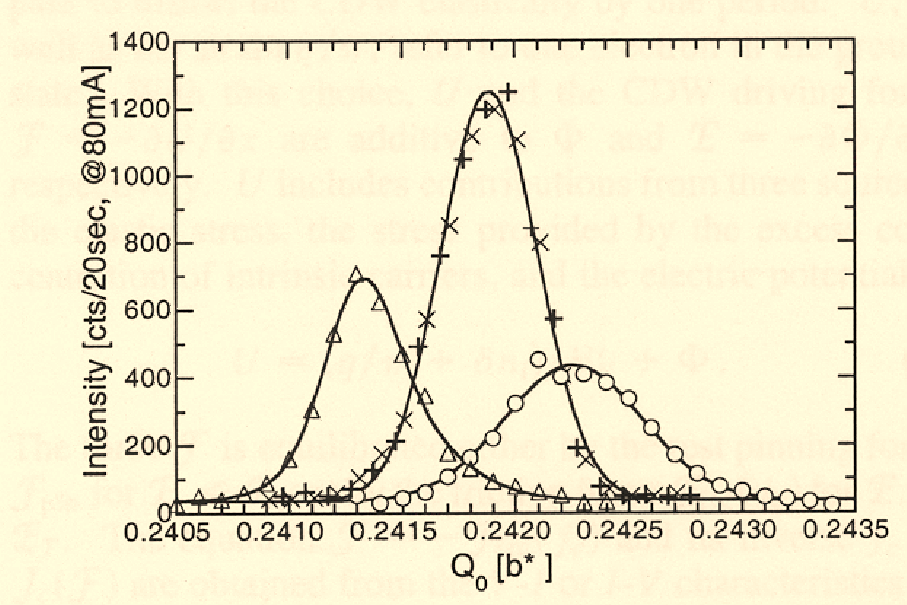


Fig. 5.2: Profils longitudinaux d'un pic satellite à 100 μm d'une électrode à T = 90K et pour différents courants : (+) $I_{DC} = 0$, (∘) $I_{DC} = 2.13\ I_{th}$, (×) $I_{DC} = 0$ après dépolarisation et (△) $I_{DC} = -2.13\ I_{th}$ [65].

effet, l'onde ne peut passer au travers d'un tel défaut et doit se convertir en électrons pour le contourner.

5.2.1 *Déformations d'une ODC selon le modèle phénoménologique et premières expériences*

Dans le cas des contacts aussi bien que pour un défaut, la position du satellite est inchangée jusqu'au courant seuil puis varie brutalement avant de saturer (voir figure 5.3). Selon le modèle phénoménologique vu au paragraphe 1.2, on s'attend au comportement suivant :

Avant le dépiégeage la vitesse de l'onde est nulle ($\partial\varphi/\partial t = 0$) et, en prenant en première approximation une force de piégeage en $F_{pin} = -E_p \sin\varphi$, l'équation d'équilibre des forces est :

$$-K\frac{\partial^2\varphi}{\partial x^2} + E - E_p \sin\varphi = 0 \tag{5.7}$$

Pour E = 0, l'onde n'est pas déformée $\partial^2\varphi/\partial x^2 = 0\ \forall x$ et $F_{pin}(\varphi) = 0 \Rightarrow \varphi = 0$.

Pour E $\neq$ 0, on considère que la force de piégeage par interaction coulombienne avec les impuretés $F_{pin}(\varphi)$ s'oppose au mouvement et compense le champ électrique. La valeur de la phase change légèrement (*i.e.* φ varie de moins de 2π), afin que le système soit de

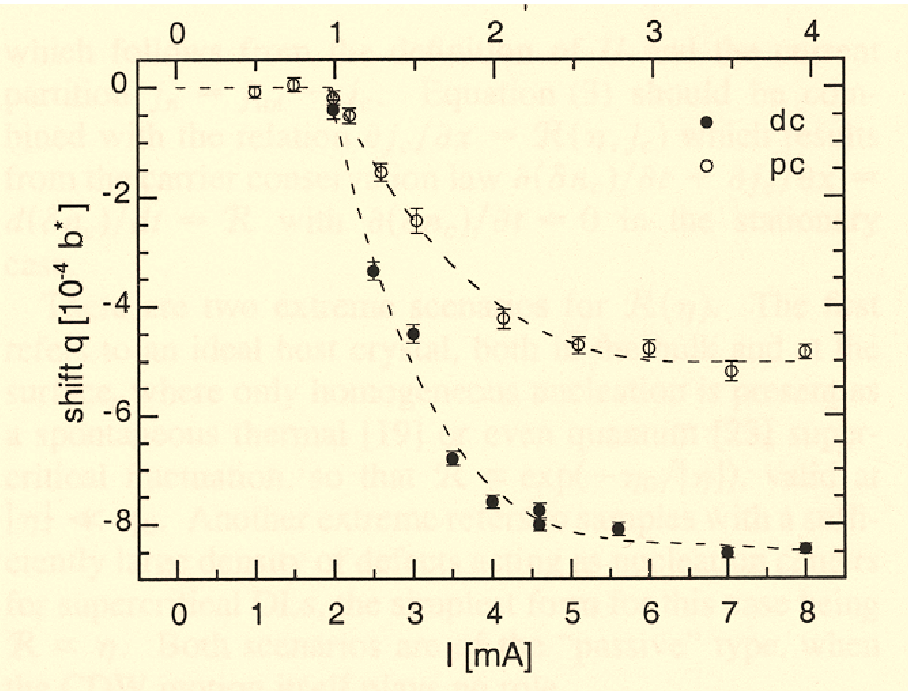


FIG. 5.3: Variation de la position d'un pic satellite (c'est à dire du shift Δq(I)) de $NbSe_3$ en fonction du courant à T = 90 K pour des courants continus (ronds creux) et pulsés (ronds pleins) égaux à deux fois le champ seuil [65].

nouveau à l'équilibre tel que $\varphi = \arcsin E/E_p$. On considère que cette variation de la phase n'engendre quasiment pas de déformations.

Pour E = E_p, les impuretés n'ont plus les moyens de s'opposer au mouvement de l'onde, mais il faut encore pouvoir nucléer des phase slips.

Pour E > E_p, la force de piègeage par impuretés F_{pin} sature à E_p et l'onde commence à se déformer tout en restant piégée. C'est maintenant la déformation qui s'oppose au champ électrique :

$$-K\frac{\partial^2\varphi}{\partial x^2} + E - E_p = 0 \tag{5.8}$$

ce qui donne une variation linéaire du déplacement du pic satellite Δq(I) $\propto \partial\varphi/\partial x$ (voir la démonstration de cette relation au paragraphe 1.5.3). Cette déformation (polarisation) avant le champ seuil n'est jamais observée expérimentalement dans $NbSe_3$, mais a été observée dans le bronze bleu par absorption infrarouge [29].

Enfin, pour des champs plus forts, il est possible de nucléer des phase slip, l'onde se met en mouvement $\partial\varphi/\partial t \neq 0$. Elle n'a plus de raison d'augmenter sa déformation car l'excès de champ électrique peut maintenant la déplacer. La déformation sature et le champ électrique ne fait que changer la vitesse de l'onde.

Cependant, ce modèle ne décrit correctement l'onde que si les déformations sont faibles

et que le phase slip est impossible. C'est pourquoi Ramakrishna *et al.* [62] furent obliger de cantonner la conversion à l'immédiate proximité des électrodes. Ils ont donc $\partial J/\partial x = 0$, *i.e.* $\partial\varphi/\partial t$ ne dépend pas de x. Et donc, dans ce régime, la déformation est encore linéaire. Ceci fut confirmé par les premiers résultats expérimentaux de Dicarlo *et al.* [13].

5.2.2 *Déformations d'une ODC près des contacts d'injection et modèle de Brazovskii*

Cependant, leur mesure ne permettait pas de résoudre les contacts. En réduisant la taille du faisceau de rayons X illuminant l'échantillon, Requardt *et al.* montrèrent que le déplacement varie exponentiellement avec x près des électrodes et est nul ou du moins varie peu au cœur de l'échantillon [65]. De plus, les mesures de transport de Lemay *et al.* établirent que $\partial J/\partial x$ peut être différent de zéro loin (*i.e.* jusqu'à quelques centaines de microns) des électrodes (voir chapitre 1).

Ainsi, Brazoskii *et al.* [10, 65] prirent le parti de développer un modèle où le phase slip est possible tout le long de l'échantillon. Il considérèrent que la déformation provient du déséquilibre entre le potentiel chimique de l'onde et celui des porteurs normaux. Ces déformations proviennent de l'existence de dislocations dans le cristal électronique constitué par l'ODC. Ces dislocations peuvent se déplacer, contenir des charges et servir d'intermédiaire entre les électrons normaux et l'onde lors des processus de conversion.

Cependant, au final, ils ne prirent en compte, comme pour le modèle phénoménologique, que la déformation élastique de l'onde (en q $= \partial\varphi/\partial x$), le champ électrique $\overrightarrow{E}$ auquel s'oppose une force de piégeage que l'on peut exprimer à l'aide d'un terme constant et d'un terme proportionel à la vitesse de l'onde ($\partial\varphi/\partial t \propto$ J$_c$). Ils rajoutèrent tout de même un terme proportionel à la variation de la densité de porteurs intrinsèques (voir le chapitre 1 pour la définition de ces porteurs) par rapport à l'équilibre. Ce terme provient du fait que, selon Brazovskii [9], les déformations de l'onde se couplent à la dynamique des porteurs intrinsèques (voir le paragraphe 1.5.1). Néanmoins, l'effet de ces porteurs est quasiment immédiatement résolu en considérant que les variations de porteurs normaux écrantent les déformations de l'onde ($[n_e + n_i] \propto q$ où n_e est la variation de porteurs extrinsèques, n_i la variation de porteurs intrinsèques et q la déformation de l'onde) et qu'il y a équilibre des potentiels chimiques entre porteurs normaux. L'effet des porteurs intrinsèques sur l'onde se résume alors à changer la valeur de la constante dans l'énergie élastique.

Partant donc des mêmes forces en présence, on aboutit à la même équation d'équilibre que dans le modèle phénoménologique, à part que maintenant la conversion entre por-

teurs normaux et ODC est possible partout dans l'échantillon. Ce modèle ne donne aucun éclaircissement sur la répartition entre la conversion et la déformation *i.e.* pourquoi les déformations s'accumulent de cette manière sur les électrodes d'injection et quelle est la loi de nucléation R(J_{ODC}, $\partial\varphi/\partial x$) où R est le taux de nucléation de porteurs condensés. De plus, il n'explique pas pourquoi la polarisation de l'onde piégée n'est pas visible aux rayons X dans $NbSe_3$. En revanche, il permet de proposer des lois de nucléation qui s'ajustent parfaitement avec les données expérimentales.

5.2.3 Relaxation des déformations

Enfin, une fois l'onde repiégée, la résistance de l'échantillon revient à sa valeur initiale, mais le satellite est déformé (le plus souvent élargi) et ne regagne pas sa position de départ. Il y a donc des effets de mémoire de la polarisation qui sont également visibles par des expériences en courant pulsé ("overshoot" [21]). Il est possible de faire disparaître cette polarisation en élevant la température de l'échantillon au-dessus de la transition de Peierls. Comme cette procédure est assez longue, Félix Nad proposa de mettre au point une procédure de dépolarisation électrique de l'échantillon. Pour ce faire, on applique des créneaux de fréquence 1 kHz. L'amplitude de ces créneaux varie linéairement dans le temps de zéro à une valeur légèrement supérieure à la tension continue maximale appliquée auparavant, puis retourne à zéro. On fait, en général, deux à trois fois ce cycle (un cycle dure environ une minute). La relaxation de ces déformations peut être étudiée en courant pulsé par des mesures aux rayons X résolus en temps et permettent d'accéder au temps de relaxation du satellite. Il apparaît ainsi que ces temps sont différents suivant la direction du scan (longitudinal ou transverse) ou de la température [70].

Ces mesures au synchrotron donnent aussi une indication sur la cohérence de l'onde au travers de la largeur de pic satellite. Les rayons X sont alors un instrument d'étude des propriétés mésoscopiques (*i.e.* de cohérence) sans qu'il soit nécessaire d'avoir un échantillon de dimensions réduites. De plus, la largeur du faisceau pouvant être abaissée jusqu'à une vingtaine de microns, il est possible d'étudier localement la cohérence de l'onde.

5.3 Cohérence temporelle et spatiale dans l'état mode locking de $NbSe_3$

Les ondes de densité de charge incommensurables dans les systèmes quasi-1D sont un prototype de transport collectif dans les systèmes désordonnés [24]. Les porteurs de charge,

en plus de leurs propriétés de transport non-linéaires, montrent d'étonnants phénomènes de cohérence : grâce à la cohérence temporelle en vitesse de l'ODC dans l'état dépiégé, il apparaît des oscillations de tension périodiques à la fréquence dite "washboard frequency". De plus, dans des mesures AC/DC, cette fréquence peut s'accrocher ("mode-locking") à une fréquence extérieure. Dans les phases de vortex, qui ont de nombreux points en commun avec les ODC, les interférences AC/DC furent mises en évidence au début des années 1970[15], tandis que ce n'est que récemment que la "washboard frequency" a été directement observée [78]. Ceci a conduit à de nouvelles simulations numériques de ces phénomènes [31] et la prédiction d'un nouvel effet d'interférence [63].

Bien qu'aisément mesurables dans les ODC et détectables dans les vortex, il reste une controverse à propos de l'origine de ces oscillations cohérentes et sur la nature de cette cohérence. En effet, il est facile de comprendre que ce type de système a besoin d'une vitesse spatialement uniforme pour conserver sa périodicité spatiale pendant le mouvement. Ceci doit conduire à un phénomène périodique dans le temps : la densité à position fixe devient périodique dans le temps à la "washboard frequency". Mais la manière dont cette périodicité apparaît pour la vitesse n'est pas si claire, même si des explications ont été fournies. Inversement l'influence de la cohérence temporelle sur la cohérence spatiale est encore moins claire. Y a t-il une compétition entre cohérence temporelle et cohérence spatiale ou bien l'augmentation de l'ordre temporel se traduit-il par une augmentation de la cohérence spatiale ? Par exemple, dans des expériences AC/DC sur les ODC, il a été montré que la vitesse du condensat pendant le "mode-locking" devient plus cohérente temporellement [74, 8] mais aucune expérience fiable n'a été menée pour étudier en même temps la cohérence spatiale du condensat. Ici, nous présentons la première expérience à notre connaissance reliant directement le "mode-locking" à la cohérence spatiale de l'ODC par le biais de mesures de diffraction à haute résolution de rayons-X couplées à des mesures *in-situ* d'interferences AC/DC.

Nous avons précautionneusement sélectionné un échantillon de $NbSe_3$ très pur(avec un champ seuil typique de $E_{th} < 65$ mV/cm at 120K) et une grande qualité cristallographique. $NbSe_3$ est un matériau à ODC qui subit deux transitions de Pieirls ($T_{p1} = 145$ K avec un vecteur de surmodulation $(0,Q_1,0)$ $Q_1 = 0.241\ b^*$ et $T_{p2} = 59$ K avec un vecteur de surmodulation $(1/2,Q_2,1/2)$ $Q_2 = 0.260\ b^*$). Il est constitué de chaînes parallèles à la direction monoclinique $\overrightarrow{b}$ et ses paramètres de mailles sont : a = 10.006 Å ; b = 3.478 Å ; c = 15.626 Å ; $\beta = 109.30°$. C'est selon cette direction $\overrightarrow{b}$ que se manifeste les propriétés de transport inhabituelles. Ainsi nous avons mesuré le pic satellite $(0,1+Q_1,0)$ sur le diffractomètre TROIKA I (ID10 A) de l'ESRF en appliquant un courant AC et

DC. L'échantillon était orienté de telle manière que l'on puisse effectuer des scans dans la direction longitudinale $\overrightarrow{b^*}$ (*i.e.* la direction du mouvement de l'ODC) et dans la direction transverse $\overrightarrow{a^*} + \overrightarrow{c^*}$).

Comme les ODC tirent leur origine d'une interaction électron-phonon, nous considérerons toujours par la suite que la position (respectivement la largeur définie comme la largeur à mi hauteur : FWHM) du satellite donne la périodicité spatiale (respectivement la cohérence spatiale) du condensat de charge. De plus, il est possible de mesurer localement la cohérence en contrôlant la largeur et la position du faisceau X à l'aide de fentes placées avant l'échantillon.

L'échantillon est connecté électriquement par deux contacts d'or séparés de 3 mm. Les mesures électriques consistent à appliquer une radio-fréquence d'amplitude et de fréquence fixe et à mesurer la résistance différentielle par un pont alternatif en fonction du courant DC passant dans l'échantillon. Pour des températures en dessous de la transition de Peierls, il est maintenant bien connu que lorsque l'on fait varier le courant continu dans l'échantillon, la résistance différentielle est constante (c'est la résistance des porteurs non condensés) jusqu'à un courant seuil. Pour un courant plus élevé la résistance différentielle décroît rapidement parce que l'ODC se dépiége et se met en mouvement. Dans l'état glissant de l'ODC un bruit appelé narrow band noise (NBN) apparaît entre les électrodes de tension, qui révèle, après transformée de Fourier, une fréquence bien définie et des harmoniques. Il fut montré [50] que la fréquence de NBN est proportionnelle au courant d'ODC $j_{ODC} = nev$, *i.e.* proportionnelle à v la vitesse moyenne du condensat, puisque n la densité de porteurs condensés et e la charge des électrons sont constantes. Ce NBN est également appelé "washboard frequency" parce que, dans un modèle à un degré de liberté, l'interaction du condensat, avec un potentiel de piégeage périodique, module dans le temps la vitesse instantanée du condensat à une fréquence telle que $v = \lambda\nu$, comme une balle roulant sur une planche à laver (washboard frequency) inclinée (où λ est la période spatiale du condensat et du potentiel de piégeage et ν la fréquence de NBN).

Cependant expérimentalement, cette cohérence temporelle n'est pas parfaite puisque les pics de NBN ont une largeur finie et s'élargissent avec les cycles thermiques, le nombre d'impuretés et les dommages mécaniques. Les phénomènes d'interférence AC/DC influencent également le NBN et peuvent être une technique pour l'étude de l'origine exacte de cette perte de cohérence [8]. En effet, il est possible d'accrocher le NBN à une fréquence extérieure ν_{ext} tant que les deux fréquences ne sont pas trop éloignées les unes des autres. Ce qui signifie que lorsqu'une harmonique ou sous harmonique de ν est proche de ν_{ext}, des petites variations du courant continu n'ont pas d'effet sur la vitesse du condensat. Ceci se

manifeste dans les caractéristiques I-V par des marches (ce phénomène est parfois appelé marche de Shapiro ou "Shapiro steps" [73] ou mode-locking) ou par des pics dans la courbe dV/dI(I) comme observé pour la première fois dans la référence [50]. Si la distribution de vitesse avant locking n'est pas trop importante, le condensat peut garder la vitesse fixée par la fréquence externe pour une importante gamme de courant DC. Alors, il peut être observé des plateaux dans la courbe dV/dI(I) dans le cas de mode-locking complet avec une valeur de la résistance différentielle à peu près égale à la valeur de la résistance dans l'état piégé. Comme la résistance des porteurs condensés est donnée par la résistance dans l'état piégé, ceci démontre que dans le régime mode-locking une augmentation du courant ne change la tension que par l'intermédiaire des porteurs non condensés.

Des expériences pour mesurer le NBN dans le régime "mode-locking" ont été réalisées [74, 8]. Une fréquence extérieure ν_{ext} était appliquée pendant que la sous-harmonique $\nu/2$ du NBN était observée à l'aide d'un analyseur de spectre. Pendant le balayage en courant DC, dans l'état mode-locking, la fréquence $\nu/2$ est fixée de telle sorte que $\nu = \nu_{ext}$ et il fut montré que la largeur de la sous-harmonique du NBN est extrêmement réduite : la vitesse est mieux ordonnée temporellement. En mesurant le NBN avec une grande bande passante, il fut observé [74] que l'amplitude intégrée du pic de NBN est inchangée sous "mode-locking". Il fut alors conclu que la cohérence spatiale du condensat est inchangée sous mode-locking. Cependant cette déduction est fondée sur le fait que le NBN est un phénomène qui a lieu au cœur de l'échantillon : dans ce cas le NBN donne la somme des spectres dans différents domaines de cohérence. Ainsi il est possible que dans l'état "mode-locking" le volume des domaines de cohérence augmente mais que leur nombre décroît de telle sorte que la somme dans le volume de l'échantillon (*i.e.* l'amplitude intégrée du NBN) reste constante. On ne peut donc que conclure que le nombre total de porteurs impliqués dans la cohérence temporelle ne change pas dans l'état mode-locking.

Donc notre but était de voir directement l'effet du mode-locking sur la cohérence spatiale locale de l'ODC en mesurant le pic satellite dans ces conditions. Nous avons réalisé des mesures à T = 100 K et 120 K où le NBN dans $NbSe_3$ est le mieux défini et où un mode-locking complet est possible. Nous avons d'abord observé des positions proches du centre de l'échantillon avec une largeur de faisceau de 70 μm pour s'affranchir des problèmes d'inhomogénéités dans l'injection du courant et de conversion de porteurs au voisinage des électrodes [65]. La position exacte x_s le long de l'échantillon a pu être déterminée à l'aide d'un scan en transmission révélant l'augmentation de l'absorption du signal au niveau des contacts d'or. Nous définissons l'une des électrodes comme étant à la position $x_s = 0$, l'autre étant alors à $x_s = 3$ mm.

Tout d'abord à 100 K, nous avons mesuré la largeur longitudinale du satellite dans l'état piégé et dans l'état dépiégé. Comme observé précédemment [10, 65], la largeur du satellite augmente pour les courants au-dessus du courant seuil puis sature, l'ODC étant plus ordonnée dans l'état piégé. A la figure 5.4, nous avons représenté en trait plein ce comportement (I_{th} = 0,2 mA). Ensuite nous appliquons une radio-fréquence (rf) à 5 MHz et d'amplitude 150 mV ; il y a mode-locking pour I_{DC} = 1,7 mA. Nous avons mesuré la largeur du satellite pour un courant en dessous (I = 1,5 mA) et au-dessus (I = 2,25 mA) de la plage de courant du mode-locking et pendant le mode-locking (I = 1,7 mA). Tandis que pour I = 1,5 mA et 2,25 mA, la largeur du satellite est la même que dans l'état dépiégé sans rf (comme on peut le voir figure 5.4), la largeur du satellite dans l'état mode-locking est divisée par un facteur deux. Cette largeur est même encore plus petite que dans l'état piégé. Donc l'échantillon est mieux ordonné spatialement dans la direction longitudinale. C'est à cette position x_s que nous avons obtenu la plus grande décroissance de la largeur du satellite par rapport à sa valeur dans l'état dépiégé sans rf.

Nous avons réalisé des expériences similaires à T = 120 K et pour une position légèrement différente le long de l'échantillon. A cette position, la largeur longitudinale du satellite, quand l'ODC est en mouvement est plus petite que dans l'état piégé *i.e.* l'ODC se réordonne dynamiquement [69, 12]. Ce réordonnement, observable uniquement autour de cette température, signifie que dans ces conditions le désordre produit moins d'effet, parce que les forces de piégeage varient rapidement et sont périodiques. Ainsi une partie de ces forces ont une moyenne nulle. On peut se demander si ce réordonnement est lié au fait qu'à cette température le mode-locking est meilleur. En effet, avec une rf de 5 Mhz et une amplitude de 150 mV, un mode locking complet apparaît pour I_{DC} = 1,2 mA, et plusieurs harmoniques avec un mode-locking incomplet sont visibles dans la courbe de résistance différentielle en fonction du courant DC comme on peut le voir figure 5.5. On peut remarquer que la résistance différentielle pour I_{DC} = 1,2 mA est presque égale à la résistance différentielle dans l'état piégé (*i.e.* à faible courant).

De plus nous avons observé que la largeur longitudinale devient encore plus petite dans l'état mode-locking. Cette largeur décroît de plus de 43 % par rapport à l'état piégé (voir figure 5.6) et de 10 % par rapport à la valeur dans l'état dépiégé sans rf. Nous avons effectué des mesures pour plusieurs courants DC intermédiaires avec rf (voir figure 5.5). La largeur du satellite commence à décroître seulement au-dessus du champ seuil et sature à une valeur approximativement égale à la même valeur que dans l'état piégé sans rf. Ce n'est que pour I_{DC} = 1,2 mA, *i.e.* dans l'état mode locking, que la largeur devient plus faible que dans l'état dépiégé sans rf. A cette position nous avons obtenu la plus grande

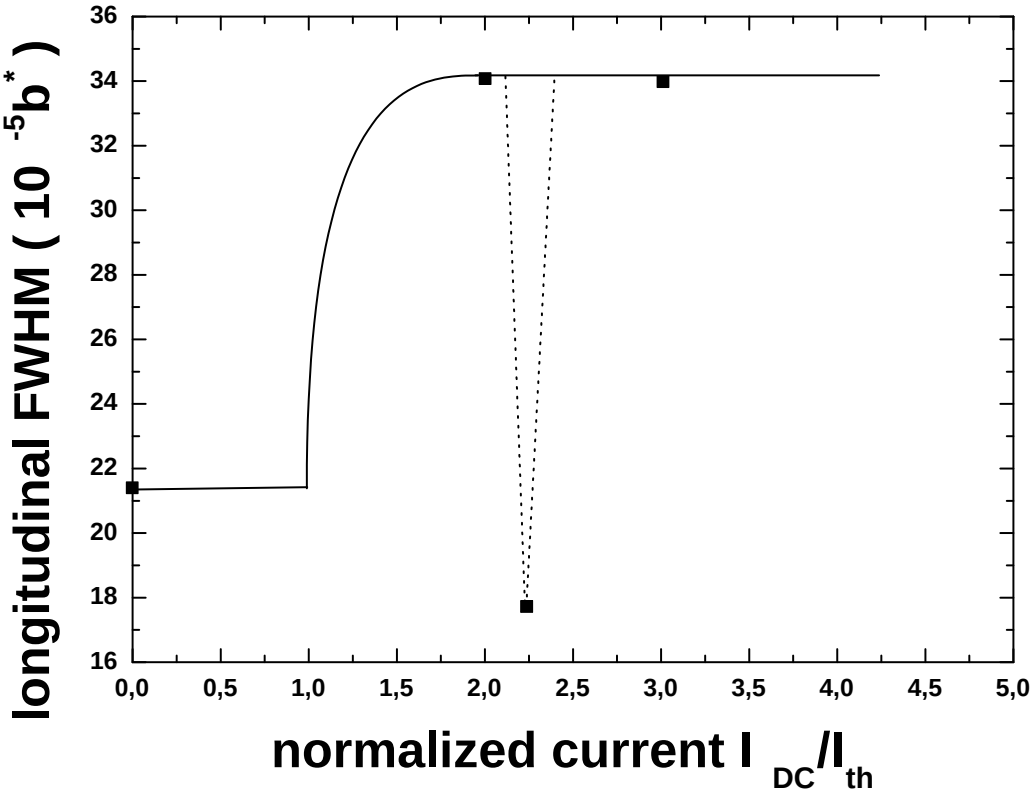


Fig. 5.4: FWHM longitudinale du satellite pour différentes valeurs de courant DC (carrés noirs) à une position au milieu de l'échantillon de $NbSe_3$ (x_s = 1,5 mm) avec rf de 5 MHz et 150 mV. La ligne en trait plein donne la variation typique de la FWHM longitudinale du satellite en fonction du courant DC sans rf (voir référence [65]).

décroissance comparé à l'état piégé.

A la même température pour une position au milieu de l'échantillon, nous avons mesuré la largeur transverse du satellite pour différentes valeurs du courant DC avec rf (voir figure 5.7). Nous voyons que la rf affecte fortement la cohérence spatiale transverse, même quand le courant n'est pas égale à 1,2 mA. Contrairement au comportement habituel [69], la largeur transverse augmente légèrement à partir du courant seuil mais brutalement dans l'état mode-locking (voir figure 5.6). Puis pour un courant supérieur à 1,2 mA la largeur revient à une valeur plus faible mais bien plus grande que la valeur sans rf.

Nous avons effectué des mesures sur plusieurs positions le long de l'échantillon jusqu'à 150 μm d'un contact (voir tableau 5.1). Nous avons observé que la décroissance de la largeur longitudinale du satellite dans l'état mode-locking n'est pas homogène ; il s'étend

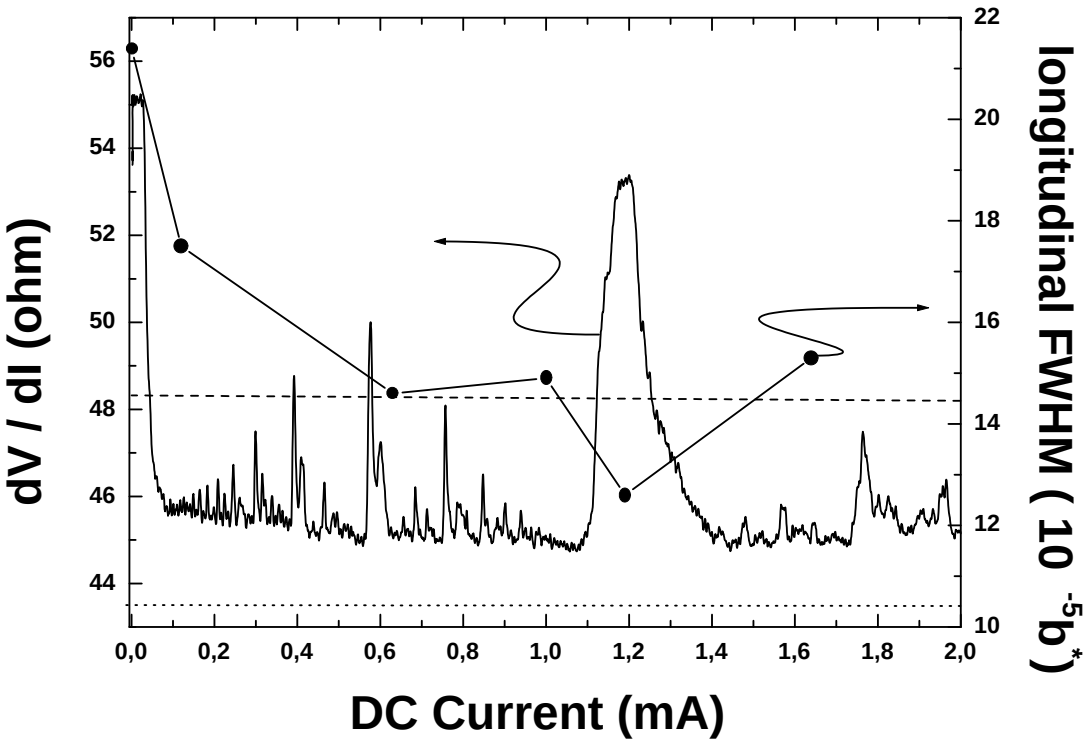


FIG. 5.5: Variation de la résistance différentielle pour une rf de 5 Mhz et 150 mV et variation de la FWHM longitudinale du satellite (ronds noirs) en fonction du courant DC à la position x_s = 1,3 mm pour notre échantillon de $NbSe_3$ à T = 120 K. La ligne horizontale en tiret noir représente la largeur minimale mesurée sans rf. La ligne horizontale en pointillé représente la résolution longitudinale du diffractomètre.

de 10 % jusqu'à 40 % par rapport à l'état piégé. Il semble qu'il n'y a pas de corrélation directe entre l'amplitude de la décroissance de la FWHM et la largeur initiale du satellite dans l'état piégé. Ceci signifie que la cohérence spatiale locale n'est pas un point essentiel pour expliquer l'inhomogénéité dans la décroissance de la largeur. Les mesures dans la direction transverse sont moins claires mais, dans la majorité des positions étudiées, la largeur du satellite augmente sous mode-locking. Ceci peut expliquer pourquoi aucune augmentation de la cohérence spatiale n'a été observée dans les mesures de transport [74]. Puisque dans la majeure partie de l'échantillon la largeur transverse augmente tandis que la largeur longitudinale décroît, le volume cohérent ne doit pas beaucoup changer. Nous pouvons conclure de nos mesures que l'augmentation de la cohérence temporelle dans l'état mode-locking conduit à un renforcement de la cohérence dans la direction du mouvement mais n'est pas suffisamment forte pour augmenter la cohérence volumique totale. Donc, le potentiel de piégeage est quasiment aussi fort que dans l'état sans mode-locking, mais il affecte différemment l'ODC en la découplant transversalement (comme on peut le voir

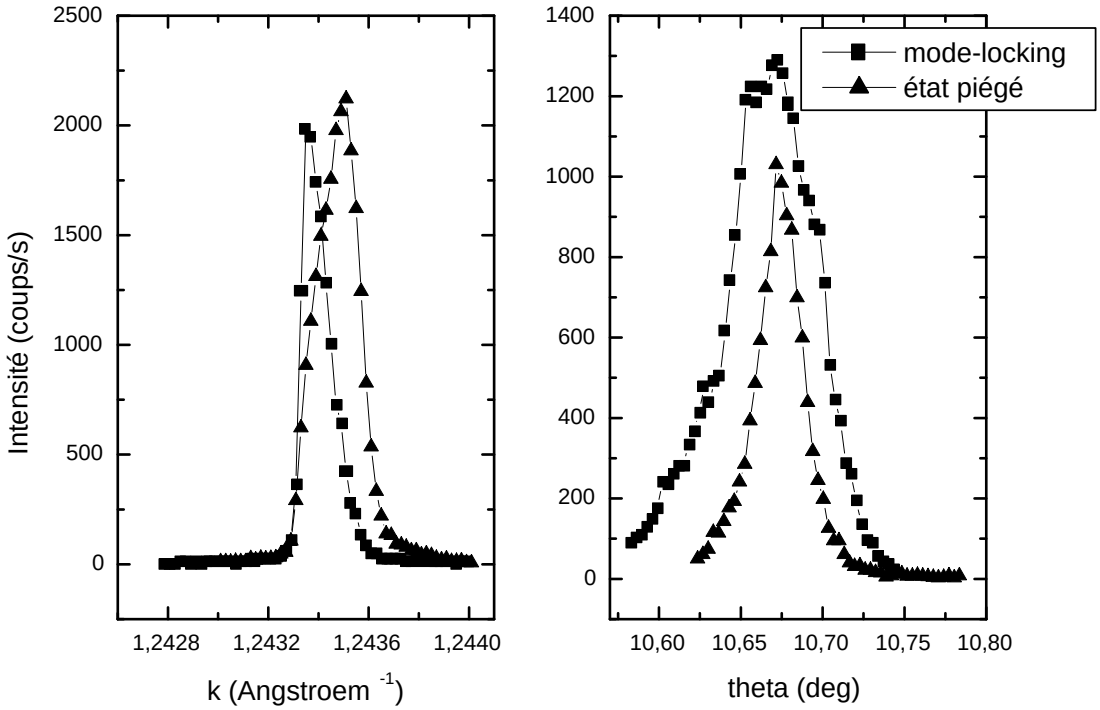


Fig. 5.6: Pic satellite de notre échantillon $NbSe_3$ à $x_s = 1{,}3$ mm et T= 120 K. A gauche : profil longitudinal du satellite dans l'état piégé (triangles noirs ▲) FWHM = 21 * 10^{-4} Å^{-1} et dans l'état mode-locking (ronds noirs •) FWHM = 12 * 10^{-4} Å^{-1}. On peut remarquer un shift résiduel. A droite : profil transverse du satellite dans l'état piégé (triangles noirs ▲) FWHM = 29 * 10^{-3} deg et dans l'état mode-locking (ronds noirs •) FWHM = 61 * 10^{-3} deg.

d'après l'augmentation de la FWHM transverse à la figure 5.7).

Dans les simulations numériques sur les vortex de la référence [31], il est montré que la moyenne temporelle du déplacement quadratique longitudinal est réduit pendant le mode-locking mais que l'ordre translationel du réseau (*i.e.* la cohérence spatiale) reste constant. Ce désaccord entre les simulations numériques et nos mesures sur les ODC signifie simplement que l'effet du mode-locking sur l'ordre spatial observé dans nos mesures serait plus faible voir indétectable dans les vortex. En effet, premièrement, on peut noter que la largeur du satellite de l'ODC ne varie pas spectaculairement comparée à la largeur du NBN dans les mesures de transport [74, 8] où le facteur de qualité du NBN augmentait par trois ordres de grandeur. Même si la FWHM longitudinale de notre échantillon est très proche de la résolution expérimentale (estimée en [12] à 10.5 *10^{-5}b*), l'augmentation maximale de cohérence est de 100 % ; deuxièmement, dans les phases de vortex, les phénomènes liés au mode-locking doivent être plus faibles parce que le facteur de qualité du NBN du

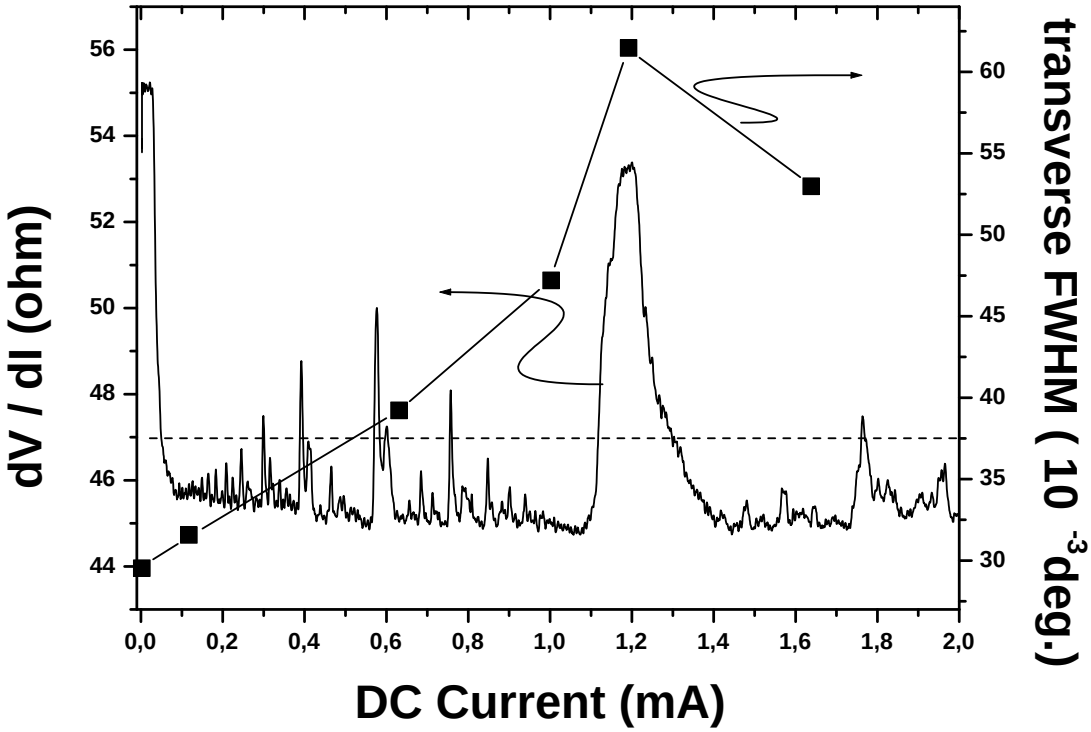


FIG. 5.7: Variation de la résistance differentielle pour une rf de 5 Mhz et 150 mV et variation de la FWHM transverse du satellite (carré noir) en fonction du courant DC à la position x_s = 1,3 mm pour notre échantillon de $NbSe_3$ à T = 120 K. La ligne horizontale en pointillés représente la largeur maximale du satellite dans l'état dépiégé sans rf.

réseau de vortex en mouvement est plus petit que 10 tandis que dans les ODC ce facteur de qualité est au moins de 100.

De plus il est connu que (voir Requardt *et al.* [65], Ref. [10]) la conversion des électrons en ODC à l'électrode conduit à des déformations du condensat. En effet, il est nécessaire de créer des fronts d'onde d'ODC près de l'une des électrodes (conduisant à un étirement) et de supprimer des fronts d'onde à l'autre électrode (conduisant à de la compression) tandis qu'au milieu de l'échantillon les fronts d'onde sont régulièrement espacés. Ces déformations se manifestent aux rayons-X par un changement de la position du pic satellite entre l'état piégé et l'état dépiégé. Il existe une relation entre le profil de déformation du condensat et la distribution spatiale de vitesse du condensat parce que le taux de nucléation des porteurs est proportionnel à la dérivée spatiale de la vitesse du condensat [68, 65, 10]. La vitesse de l'ODC est nulle au niveau des électrodes (parce que le courant d'ODC est nul dans l'électrode) et est constant et homogène au centre de l'échantillon. La distance entre les électrodes et le position où la vitesse commence à être homogène définit le profil de

x_s	T (K)	wk ($10^{-5}b^*$)	wk*($10^{-5}b^*$)	wθ (10^{-3} deg.)	wθ* (10^{-3} deg.)
0.15	100	17	11	35	39
1.5	100	24	17	44.5	33.3
0.45	120	19	13	21	26
1.3	120	21	12	29	61
1.1	100	19.5	17	18	32
0.35	100	23	18	19	30
0.75	100	23	19	20	34

Tab. 5.1: FWHM du satellite pour différentes positions le long de l'échantillon avec x_s la position de l'échantillon par rapport à un contact en mm ; T (K) la température ; wk la FWHM longitudinale dans l'état piégé, wk* la FWHM longitudinale dans l'état mode-locking ; wθ la FWHM transverse dans l'état piégé et wθ* la FWHM transverse dans l'état mode-locking.

distribution de vitesses. Ici, même si nous n'avons pas effectué une étude systématique en fonction de la position, pour toutes les positions étudiées le long de l'échantillon, nous n'avons jamais observé de différence dans la position du satellite entre l'état mode-locking et l'état dépiégé sans rf même pour des positions à 150 μm d'un contact où le shift était de $4*10^{-4}$ b^*. Cela signifie que l'augmentation de la cohérence temporelle de la vitesse de l'ODC n'a pas d'influence sur le profil de conversion et donc sur le profil de vitesses. Ceci est en accord avec les mesures de Bhattacharya *et al.* [8], selon lesquels dans l'état mode-locking, ce sont les fluctuations temporelles lentes de la vitesse qui sont supprimées et pas seulement le profil spatial de la vitesse, contrairement à ce qui est cru habituellement. Avec nos mesures nous allons au delà et nous montrons que le profil spatial de vitesse n'est pas affecté par le mode locking

5.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons vu que l'augmentation de la cohérence temporelle d'une ODC induit une meilleure cohérence spatiale. Ceci n'était pas évident *a priori*. En effet, il est clair que la cohérence spatiale induit une cohérence temporelle : les fronts d'ondes doivent se déplacer à la même vitesse pour garder leur espacement périodique en π/k_F. En revanche, si on force les fronts d'onde à se déplacer à la même vitesse, rien ne leur interdit de répartir aléatoirement leur espacement spatial. En fait, il se trouve que dans les ODC, les impuretés altèrent la périodicité spatiale mais sont aussi sûrement la source de la périodicité temporelle de la vitesse de l'onde. En forçant la périodicité temporelle à

l'aide d'une excitation extérieure, on diminue l'effet des impuretés sur le condensat et on accroît ainsi sa cohérence spatiale.

6

Cohérence et interaction entre deux ODC

Dans $NbSe_3$, il est assez facile de faire coexister deux ODC, soit en allant à basses températures car l'échantillon aura alors subi deux transitions de Peierls, soit en injectant deux courants indépendants dans l'échantillon. Suivant les zones de l'échantillon, l'onde peut alors avoir une vitesse différente et donc sa cohérence est brisée. Alors qu'il est admis qu'il n'y a pas de véritable interaction entre des électrons normaux et une ODC, il n'en est pas de même entre deux ODC à cause des effets de cohérence. Cependant, cette interaction n'a pas encore été complètement étudiée notamment par l'intermédiaire des rayons X.

6.1 Cas de deux ODC se déplaçant à des vitesses différentes

6.1.1 Tension de phase slip

Nous avons vu au chapitre précédent que pour qu'une ODC soit dépiégée, il faut qu'elle surmonte la force de piégeage volumique, mais aussi une force qui a été attribuée à la nucléation de phase slip. Cette force nécessite une tension supplémentaire à proximité des électrodes où se produisent des phénomènes de conversion électron/ODC. De telles électrodes sont les électrodes où l'on injecte le courant mais aussi certaines électrodes de mesures de tension. En effet, si celles-ci sont larges, en contact direct avec l'échantillon et de résistivité plus faible que l'onde, les porteurs condensés ont tendance à redevenir des particules normales et à passer par l'électrode.

Il est toutefois possible d'avoir des électrodes non perturbatives en évaporant sur un substrat des lignes métalliques de largeur inférieure à 10 microns. On pose l'échantillon sur le substrat et le contact se fait soit par électrostatique, soit par pression mécanique, soit en déposant une fine couche de collodion sur tout l'échantillon afin de le plaquer sur le substrat. La composition du collodion utilisé dans ce genre d'expérience est un peu différente de celle utilisée habituellement, car on a besoin qu'il se forme un film très mince afin qu'il ne soulève pas l'échantillon au dessus des contacts, que le solvant s'évapore

rapidement et que l'échantillon n'ait pas le temps d'être soulevé par la poussée d'Archimède et de flotter à la surface du liquide. Il faut donc une solution composée de 0.10 g d'éthyle cellulose et de 25 ml d'éthyle acétate. Il est nécessaire de chauffer la solution pour bien dissoudre les flocons d'éthyle cellulose. On peut aussi substituer l'éthyle acétate par du méthanol et réduire un peu la quantité d'éthyle cellulose pour avoir un film plus mince. Selon Lemay, il faut également que les électrodes soient moins épaisses que 3000 Å pour ne pas déformer mécaniquement l'échantillon.

Cette technique a permis de clairement identifier les deux forces de piégeage. Tout d'abord, dans une configuration à 4 électrodes, en montrant que le courant seuil est différent suivant les électrodes où le courant est injecté. Dans la configuration dîte normale, on injecte le courant par les électrodes les plus éloignées (électrodes externes) et on mesure la tension avec les deux autres (électrodes internes) qui sont donc loin de la zone d'injection. Dans la configuration transposée, on mesure la tension entre les électrodes externes et on injecte le courant par les électrodes internes. Cette fois-ci, la mesure de tension englobe la zone d'injection et on mesure effectivement que l'onde se dépiège pour une tension plus élevée. La différence de tension entre la configuration transposée et la configuration normale est appelée la tension de phase slip. On notera que cette étude n'est possible que si on est sûr que les électrodes de mesures de tension sont non perturbatives car, sinon, il n'y a pas de différence entre la configuration normale et la configuration transverse. En faisant varier la distance entre les deux électrodes internes, on montre même que la tension de phase slip est bien indépendante de la longueur alors que la tension nécessaire pour surmonter le piégeage des impuretés est proportionnelle à la longueur.

La technique des électrodes non perturbatives a également permis deux types d'études sur l'interaction entre deux ODC. Nous allons détailler chacune d'elle, bien que nous n'ayons effectué des mesures aux RX que sur l'une des deux. Dans la première, nous rappellerons les principaux résultats en transport obtenus par le passé et soulignerons les petits ajustements à apporter à l'interprétation des résultats à la lumière des connaissances d'aujourd'hui. Pour la deuxième, nous présenterons les résultats de transport, puis ceux par rayons X et comment il est possible de les interpréter.

6.1.2 Injection de deux courants dans des segments voisins

L'expérience consiste à étudier la dynamique de l'onde dans un segment 1-2, lorsqu'un segment voisin 3-4 est dépiégé (voir l'encart figure 6.1). Pour ce faire, on mesure les fréquences de NBN υ_{12} et υ_{34} pour différents courants i_{12} et i_{34}. La fréquence du NBN étant

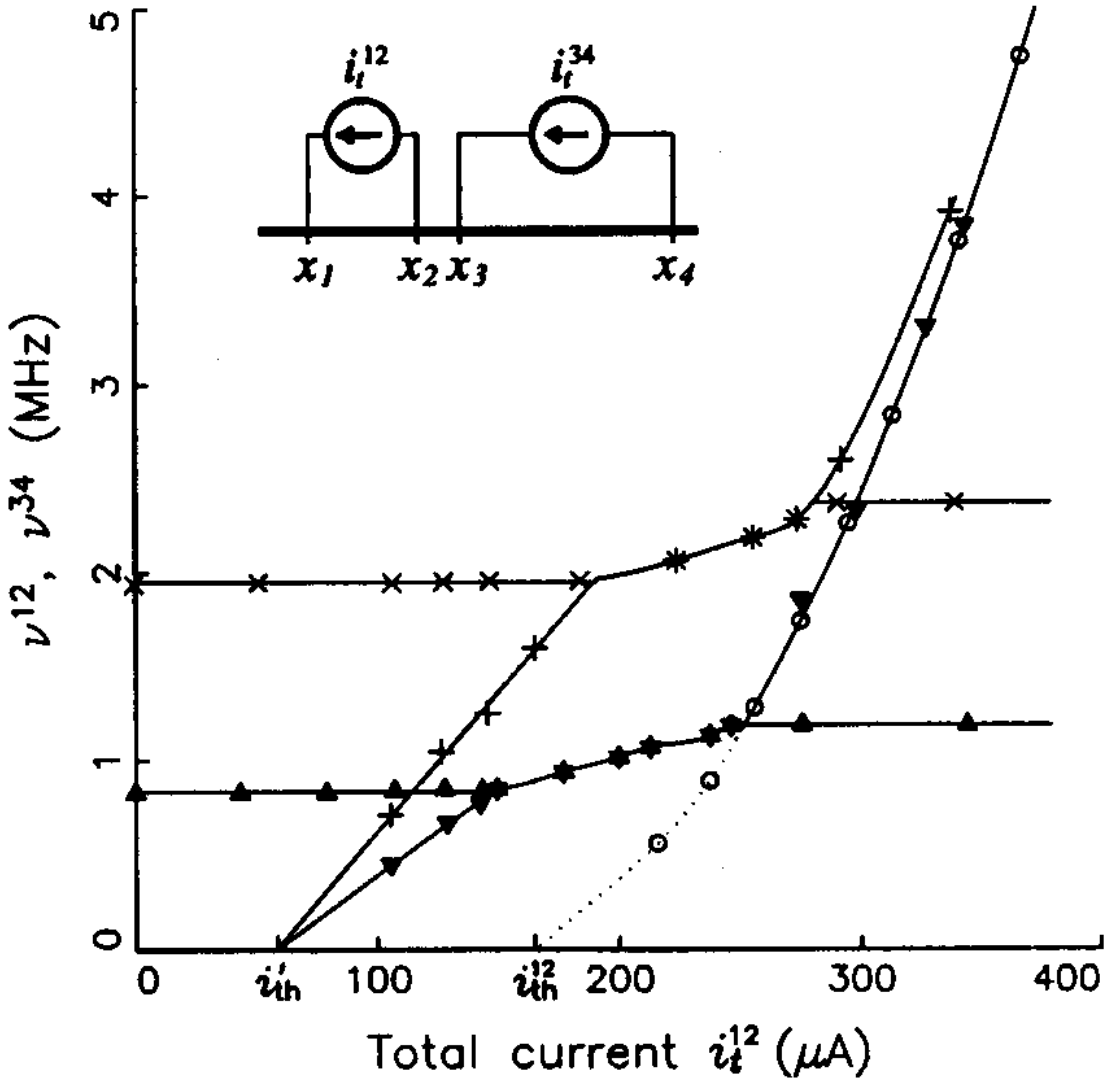


FIG. 6.1: Fréquence de NBN mesurée en fonction du courant i_{12}. Les ronds creux ○ indiquent la fréquence υ_{12} pour $i_{34} = 0$. Les triangles noirs vers le haut ▲ indiquent la fréquence υ_{12} et les triangles noirs vers le bas ▼ indiquent la fréquence υ_{34} pour $i_{34} = 100$ μA. Les + indiquent la fréquence υ_{12} et les × indiquent la fréquence υ_{34} pour $i_{34} = 132$ μA. Les traits sont un guide pour les yeux. L'encart montre la géométrie expérimentale. Les mesures ont été effectuées à partir d'un échantillon de $NbSe_3$ à T = 42 K avec $l_{12} = 50$ μm, $l_{23} = 0$ et $l_{34} = 500$ μm [36].

proportionnelle à la vitesse de l'onde, on a ainsi une mesure de la dynamique dans les deux segments. Les résultats lorsque i_{12} et i_{34} sont tous les deux positifs sont présentés figure 6.1, d'après [36, 72].

Les deux segments interagissent clairement, on notera :

- le phénomène d'accrochage entre les deux ondes, lorsque les deux fréquences de NBN υ_{12} et υ_{34} se rejoignent, la première entraîne la deuxième (mais aussi la deuxième retient la première) sur une grande plage de courant.

– La vitesse du segment 3-4 peut changer bien que le courant i_{34} reste constant.
– Le courant seuil du segment 1-2 dépend du courant circulant dans le segment 3-4

Ces phénomènes ne sont observables qu'à condition que la distance entre 2 et 3 soit plus petite que 100 μm. Ces résultats ont été interprétés en prenant en compte les contraintes élastiques de l'onde à longue portée. Bien que l'interprétation initiale [72], ainsi que celle de Lemay *et al.* [36], ne prennent en compte que la contrainte provenant de la polarisation et variant linéairement avec la longueur sur tout l'échantillon (alors que cette contrainte est moins importante que celle provenant de la conversion), le raisonnement reste globalement correct et ne nécessite que quelques aménagements, d'autant que sur de petites distances la contrainte due à la conversion varie également linéairement avec la longueur.

Considérons le cas où le courant i_{34} est tel que l'onde est dépiégee entre 3 et 4 et que les porteurs sont injectés en 4 et repris en 3. L'hypothèse développée dans la référence [72] est que les déformations élastiques s'étendent au-delà des électrodes d'injection (*i.e.* en dehors du segment 3-4). Cette hypothèse n'a été vérifiée directement que récemment par des mesures aux rayons X, montrant que cette déformation pouvait s'étendre sur une centaine de microns. Le courant de l'onde s'étend aussi en dehors de 3 et 4 comme l'ont montré les expériences de Lemay *et al.* [37], où une tension entre 2 et 3 apparaît. Cette tension est de signe opposé à la tension entre 3 et 4, c'est à dire, qu'il circule en sens inverse pour compenser le courant de l'onde. En effet, entre 2 et 3 le courant total doit être nul. Il y a donc possibilité de phase slip entre 2 et 3 et même au-delà, si la distance entre 2 et 3 est faible.

Maintenant, injectons un courant entre 1 et 2 dans le même sens que celui entre 3 et 4. Bien que le phase slip soit autorisé en 2, il n'y a pas de conversion de l'onde en électrons normaux à cette électrode car celle-ci injecte des porteurs. En revanche, le champ électrique entre 1 et 2 crée une déformation qui se superpose à celle existant déjà et donc étend la zone de phase slip. La possibilité de convertir l'onde en porteurs normaux au niveau de l'électrode 1 (laquelle retire des porteurs) apparaît donc pour un courant plus faible que si aucun courant ne circulait entre 3 et 4. Inversement, la possibilité de convertir des porteurs normaux en onde au niveau de l'électrode 2 apparaît pour un courant plus fort, car cette fois les déformations s'y opposent. Il existe donc une plage de courant où des électrons normaux peuvent être condensés en ODC à une électrode (4) et où les porteurs de l'ODC se recombinent en électrons à deux électrodes (3 et 1).

Lorsque l'on augmente encore le courant entre 1 et 2, l'onde se recombine de plus en plus en 1 et de moins en moins en 3 car elle a plus intérêt à ne pas se recombiner en 3

pour minimiser son énergie élastique de déformation sur tout l'échantillon. On a ainsi v_{12} qui augmente.

Lorsque v_{12} rejoint v_{34}, toute la déformation en 3 disparaît pour une large plage de courant $v_{12} = v_{34}$, les porteurs normaux sont condensés en 4 et l'ODC se recombine en électrons en 1 uniquement. Ce phénomène d'accrochage est encore assez mal compris et pourrait être étudié aux rayons X. En particulier, on ne sait pas si la déformation change en 4 pendant cet accrochage et comment elle change. En effet, habituellement on étudie la déformation lorsqu'un I_{tot} est injecté et que le système établi lui même l'équilibre entre le courant normal et le courant de l'onde alors qu'ici I_{tot} est toujours le même, mais cette fois le courant de l'onde est fixé à une valeur différente de sa valeur d'équilibre. Cette étude pourrait amener à considérer que le processus de nucléation est hautement non local, puisqu'un changement des déformations de l'onde en 3 pourrait occasionner des modifications plusieurs millimètres plus loin en 4, c'est à dire, sur des distances un ordre de grandeur supérieur aux distances typiques de déformation élastique. Contrairement à ce qui est admis de nos jours, la loi de nucléation en chaque point ne pourrait alors être défini que par intégration sur toute la longueur de l'échantillon.

En augmentant encore le courant entre 1 et 2, la déformation en 2 parvient à dépasser la déformation critique permettant le phase slip. Les porteurs normaux sont maintenant condensés en 2 et 4 et l'ODC se recombine en électrons en 1 seulement, les deux ondes ne sont plus accrochées.

Enfin, dans le cas où les courants i_{12} et i_{34} sont en sens opposés, nous pensons qu'il doit y avoir des effets du même type contrairement aux affirmations de Lemay *et al.* En effet, il doit y avoir une plage de courant où le phase slip est possible en 2 mais, cette fois, pas en 1. Les porteurs normaux seraient alors toujours condensés en 4, mais l'ODC se recombine en 3 et en 2.

En conclusion, cette expérience montre que les déformations élastiques jouent un grand rôle sur la dynamique des ondes de densité de charge et qu'elles peuvent amener à des situations où les zones de phase slip ne vont pas par paires. En effet, l'idée clef de l'interprétation de cette expérience est que des porteurs normaux peuvent être condensés à une électrode seulement et l'ODC se recombine en électrons normaux à deux électrodes. Enfin, cette expérience montre que le rapport entre le courant normal et le courant de l'onde au cœur de l'échantillon (où les potentiels chimiques sont sensés être à l'équilibre) n'est pas unique pour un même courant total.

6.1.3 Superposition de deux courants dans le même segment

L'expérience consiste à injecter un premier courant fixe, I, entre 1 et 4 (en gardant les mêmes conventions et le même ordre des contacts que sur la figure 6.1) tel que l'onde soit dépiégée et à faire varier un deuxième courant i entre 2 et 3. On peut faire naître une zone de phase slip et la moduler dans une partie de l'échantillon où l'onde est déjà en mouvement. Ainsi, il est possible de voir si la déformation et le processus de conversion dépendent effectivement de la différence entre les courants à gauche et à droite de l'électrode.

6.1.3.1 *Mesure de Bruit*

Cette expérience fut d'abord effectuée par Marie Claire Saint-Lager [72] tel que l_{23} soit compris entre 50 et 100 μm. Comme pour l'expérience précédente, le système obéit à différents régimes suivant la valeur du courant i. Par la suite, nous appelons $I_{th} > 0$ le courant seuil du segment 2/3 dans la configuration normale (voir paragraphe 6.1.1) et $i_{th} > 0$ le courant seuil de ce même segment dans la configuration transposée. Ainsi I_{th} comprend la contribution de piégeage par impuretés (ceci est d'autant plus juste que la distance l_{12} est grande) et (I_{th}-i_{th}) = $i_{ps} > 0$ la contribution du piégeage due à la nucléation de phase slip en 2 et 3.

Lorsque i est dans le même sens que I, mais de faible amplitude (*i.e.* $i < i_{ps}$), la différence de tension due à i est inférieure à la tension de phase slip et donc il ne peut y avoir de conversion entre 2 et 3. Cependant, le champ électrique entre 2 et 3 étant supérieur à celui entre 1 et 2, l'onde voudrait se déplacer plus vite entre 2 et 3 qu'entre 1 et 2 ce qui est impossible sans conversion. C'est pourquoi, le système établit un compromis et augmente la vitesse globale de l'échantillon. On a donc, là aussi un phénomène d'accrochage et la fréquence de NBN, qui est unique pour l'instant, augmente avec i.

Pour un courant i plus élevé, la conversion devient possible entre 2 et 3 et l'onde se casse en deux puis en trois morceaux comme l'atteste la présence de trois fréquences de NBN.

Lorsque i est en sens inverse de I, on a tout d'abord également une zone d'accrochage pour $i > -i_{ps}$ puis l'onde entre 2 et 3 se ralentit de plus en plus et est piégée pour $|i_1| = i_{ps} + (I - I_{th}) = I + i_{th} - 2I_{th}$, c'est à dire, lorsque le courant i a diminué le champ électrique entre 2 et 3 de telle manière que les impuretés puissent repiéger l'onde. On notera que

nous sommes dans le cas insolite où l'onde est piégée par les impuretés dans un segment où il se produit du phase slip à ses deux bouts, alors qu'habituellement, l'onde se libère du piégeage par impuretés avant de générer du phase slip. On constate bien par des mesures de transport que la résistance du segment 2-3 regagne sa valeur dans l'état piégé.

Ensuite, il suffit de fournir un courant supplémentaire supérieur à deux fois le courant de dépiégeage par impureté c'est à dire $|i_2| = |i_2| + 2\ I_{th}$ pour faire glisser l'onde en sens inverse, puisque le phase slip est déjà généré. Donc, pour $|i| > I + i_{th}$, l'onde est de nouveau en mouvement.

6.1.3.2 *Mesures RX*

Les mesures de diffraction aux rayons X nécessitent un substrat très peu épais afin de réduire l'absorption. Nous avons donc lithographié à l'aide d'un microscope électronique des électrodes d'Or sur des substrats en saphir de 100 μm d'épaisseur. Les électrodes sont constituées d'une première couche d'adhérence de 50 Å de Ti, puis d'une couche de 2000 Å d'Or. Chaque substrat comporte cinq paires de contacts. Pour chaque paire, l'espace entre les deux électrodes est de 220 μm (voir figure 6.2) et la largeur va de 1 à 5 μm. Les paires sont espacées entre elles d'une distance d'environ 760 μm. Chaque électrode est reliée à un plot de 300 μm de large pour permettre de microsouder. On place, ensuite, le saphir sur une plaque de cuivre percée et on microsoude les plots d'Or. On dépose l'échantillon le plus perpendiculairement possible aux multiélectrodes puis on laisse tomber une goutte de collodion au milieu du substrat, celle-ci se répand par capillarité. On laisse sécher avant de tester la résistance des contacts. Celle-ci peut aller de 50 Ω à plusieurs kΩ. Si l'échantillon n'est pas contacté, on l'enlève, on nettoie le substrat et on recommence avec un autre échantillon. Si l'échantillon est contacté, on teste sa qualité cristallographique sur une anode tournante qui nous permet de sélectionner la paire d'électrodes que nous étudierons en détails.

Les mesures de diffraction du pic satellite ont été effectuées à T = 100 K à l'ESRF avec le même dispositif expérimental qu'au chapitre 5. On utilise deux sources de courant flottantes sur batteries et on mesure la résistance différentielle du segment entre les deux électrodes sélectionnées, que nous appellerons à partir de maintenant 2 et 3 en accord avec les conventions des paragraphes précédents. L'électrode 1 (respectivement 4) est à 650 μm de 2 (respectivement 3) et appartient à une paire d'électrodes voisines. Une étude précise de la structure du cristal d'ODC sans courant révèle qu'il subit de légères contraintes

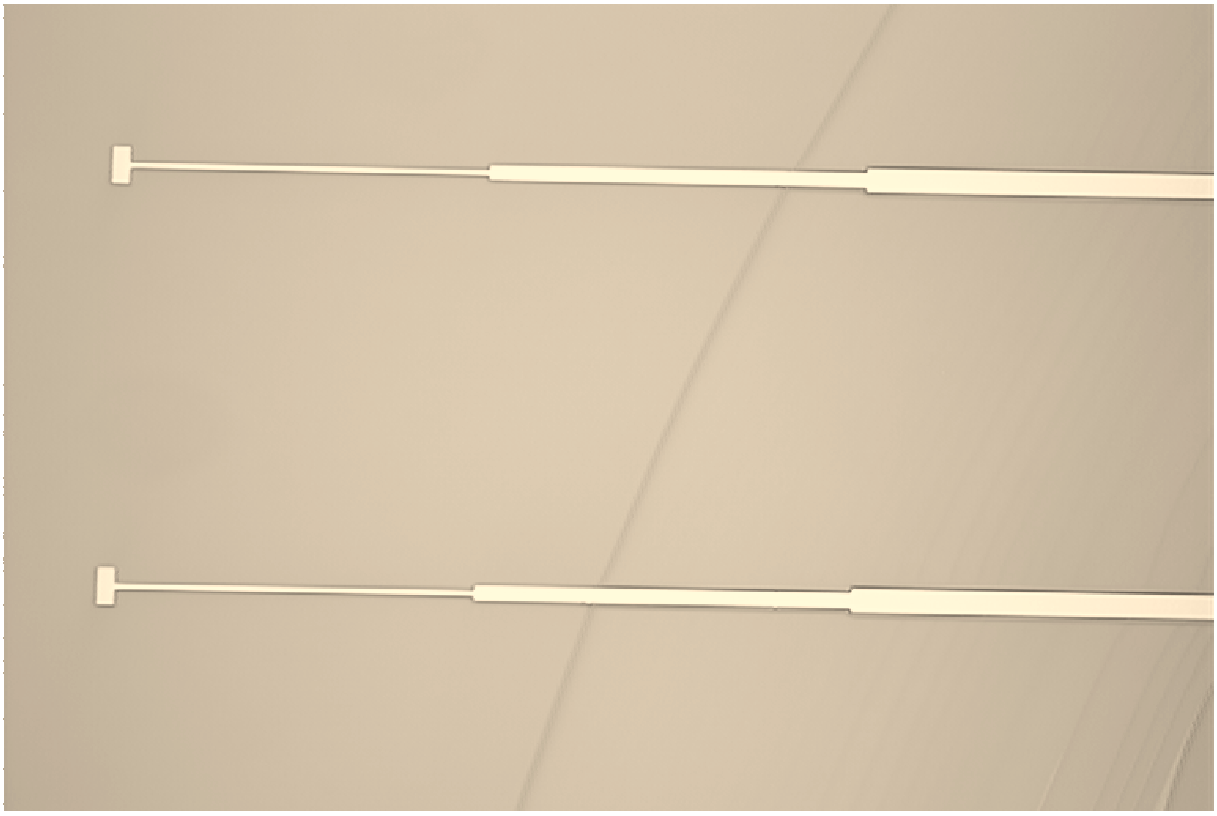


Fig. 6.2: Photographie au microscope à haute résolution de 2 électrodes d'Or lithographiées. Les petits plots carrés (10 μm * 10 μm) aux extrémités servent à consolider la fixation des lignes peu larges. On peut voir que les électrodes ne sont pas de la même largeur sur toute la longueur.

mécaniques au niveau des électrodes. On mesure ensuite les champs seuils dans les configurations normales et transposées (voir figure 6.3). On constate que les courbes de dépiégeage ne se superposent pas, signe que les contacts 2 et 3 sont peu ou non perturbateurs. Par contre, la différence entre les deux champs seuils est faible I_{th} = 115 μA, alors que i_{th} = 125 μA, sans doute parce que la distance entre 2 et 3 est assez élevée. Les effets du phase slip sur le courant seuil deviennent importants pour des longueurs inférieures à 100 μm [72].

La variation spatiale du déplacement du satellite (voir figure 6.4) sans et avec un courant i = 0,6 mA > i_{th} injecté entre 2 et 3 (*i.e.* dans la configuration transposée), montre que l'électrode 2 est autour de la position x_s = 2,8 mm et que l'électrode 3 est autour de la position x_s = 3 mm. On peut noter que dans le cas où seul le courant i est injecté la déformation peut atteindre 4 * 10^{-4} b^* au niveau des électrodes d'injection.

On ramène, ensuite, le courant i à zéro et on applique un courant I entre 1 et 4 de 0,5 mA, l'onde est alors dépiégée sur tous les segments. Il y a une déformation en 1 et 4, mais assez peu en 2 et 3.

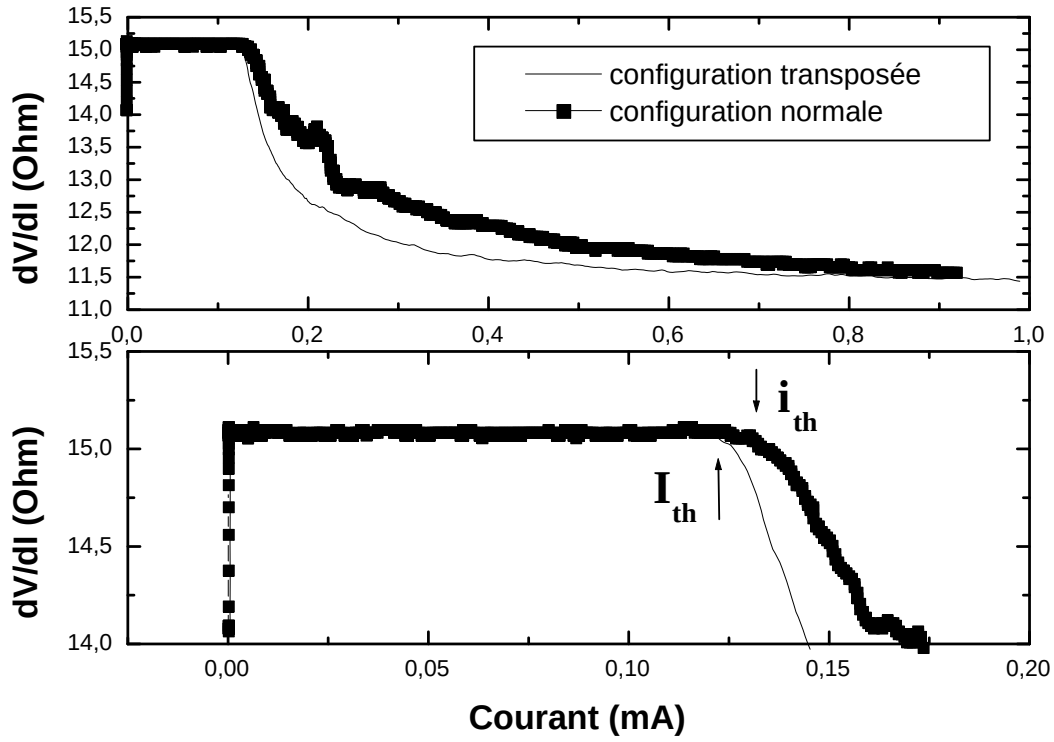


FIG. 6.3: Dépiégeage en configuration normale et transposée d'un échantillon de $NbSe_3$ à T = 100K. Le graphique du bas est un zoom de celui du haut pour des courants proches du champ seuil.

Lorsque, maintenant on laisse ce courant I et qu'on superpose un courant i, on note que :

- Le courant i entre 2 et 3 ne doit avoir aucun effet sur la variation spatiale du déplacement du pic satellite, tant que $|i| < i_{ps} = 125 - 115 = 10\ \mu A$. Cependant, le courant de phase slip étant trop faible, cette zone d'accrochage risque de ne pas être observable.
- Pour i de même signe que I et $i > i_{ps}$, l'onde entre 2 et 3 n'a plus la même vitesse que celle entre 1 et 2 ou celle entre 3 et 4. Il y a donc phase slip au niveau des électrodes 2 et 3. Donc, dans la zone autour de l'une de ces électrodes, la déformation doit augmenter puis saturer.
- Pour i de signe opposé à I, le comportement de l'onde est beaucoup plus riche car elle peut se repiéger entre 2 et 3 et même changer le sens de son mouvement par rapport au reste de l'échantillon. Aussi, pour $I + i_{th} - 2I_{th} > |i| > i_{ps}$, l'onde va-t-elle moins vite entre 2 et 3 qu' entre 1 et 2, ou 3 et 4. La déformation est de signe opposé, par rapport au cas ou i et I sont de même signe, alors que l'onde se déplace toujours

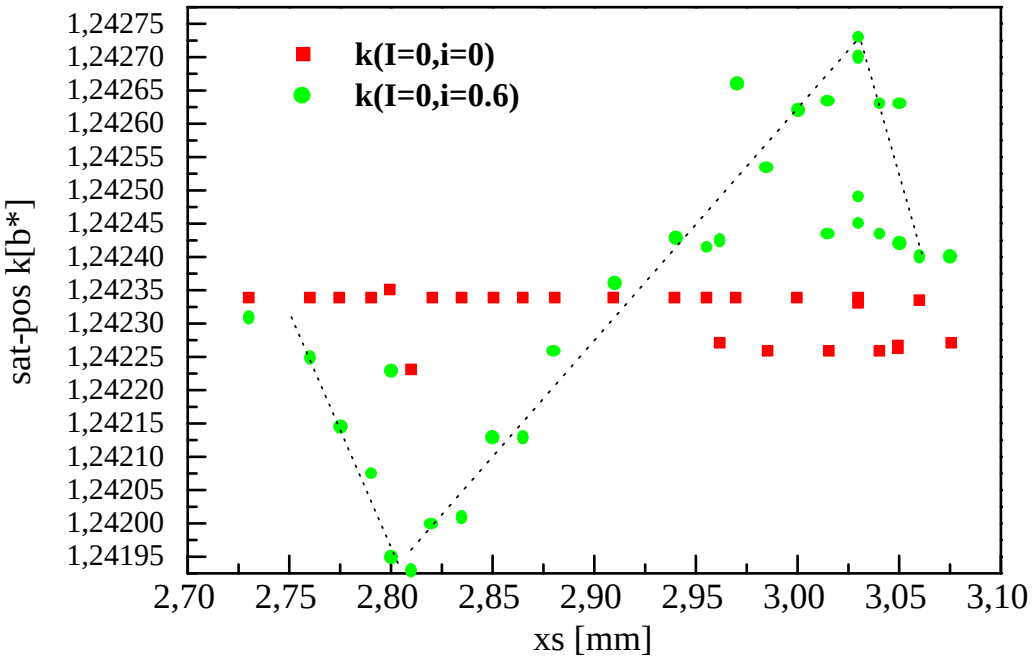


Fig. 6.4: Variation spatiale du déplacement du pic satellite sans courant (carrés pleins) et avec courant un courant i = 0,6 mA (ronds pleins) dans échantillon de $NbSe_3$ à T = 100K. Le courant i est injecté entre les électrodes 2 et 3 situé respectivement à x_s = 2,8 mm et x_s = 3 mm. La ligne en pointillé est un guide pour les yeux.

dans le même sens. On peut voir cet état comme un défaut artificiel modulable car il provoque une déformation et une perturbation des porteurs, en tout point semblable à celui d'un défaut cristallin [68]. Au niveau de électrode 2, l'onde doit se convertir en électrons normaux, puis, à l'électrode 3, les porteurs peuvent de nouveau se déplacer sous forme d'ODC. Ainsi, ce genre d'expérience pourrait être un moyen de vérifier que les phénomènes de switching à basse température (voir paragraphe 4.2.3) sont bien dus à des défauts macroscopiques (de l'ordre de 20 μm). Il suffirait de prendre un échantillon sans switching et de le faire switcher en variant le courant entre 2 et 3.

– Pour $I + i_{th} > |i| > I + i_{th}$ - $2I_{th}$, l'onde se repiège (voir figure 6.5). Dans cette plage de courant, la vitesse de l'onde entre 1 et 2, ou 3 et 4, ne varie pas car I est constant et celle entre 2 et 3, non plus, car l'onde est piégée. Le processus de conversion en 2 et en 3 est donc toujours présent, mais ne change pas. La déformation doit donc rester constante.

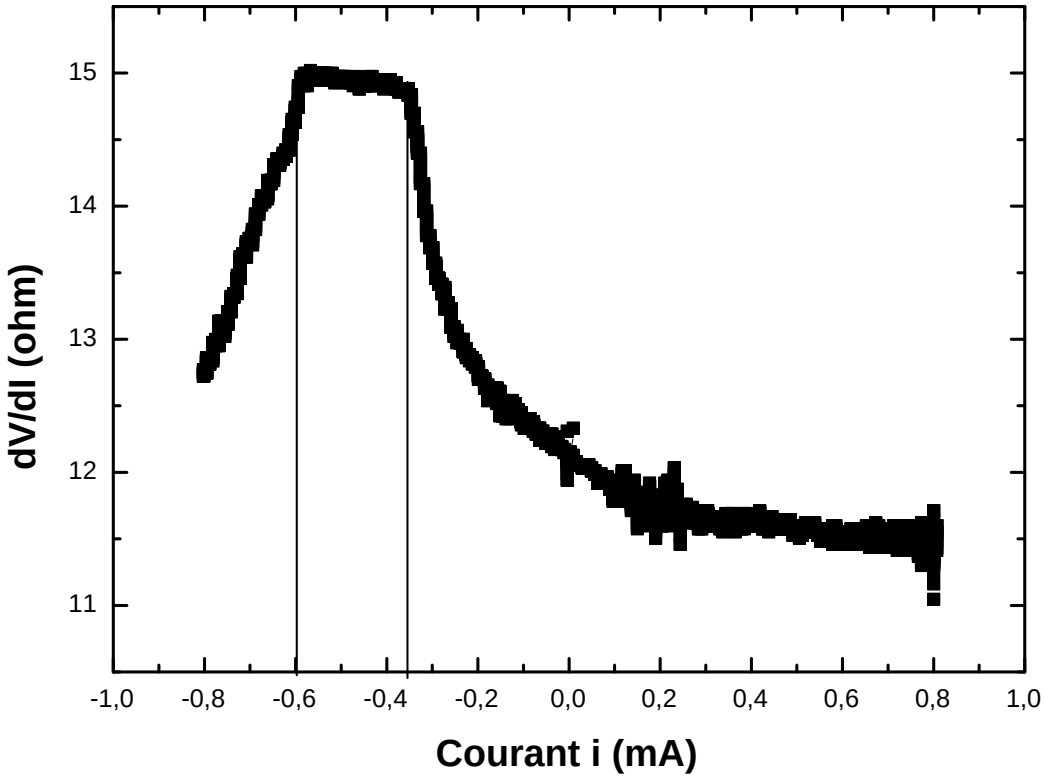


FIG. 6.5: Courbe dV/dI(I) d'une ODC en présence de 2 courants en sens inverse à 100K. Le courant I est fixe et vaut 0,5 mA. Le courant i est négatif et variable. Le plateau de résistance différentielle correspond au repiègeage de l'onde et donc à la loi ohmique des porteurs normaux.

– Enfin, pour |i| >I + i_{th}, la déformation doit augmenter de nouveau dans le même sens qu'avant le repiégeage, puis saturer.

Nous avons étudié précisément la déformation en deux points : x_s = 2,77 mm, c'est à dire, près de l'électrode 2 mais en dehors du segment 2-3 et x_s = 3,06 mm, c'est à dire, près de l'électrode 3 mais à l'intérieur du segment 2-3. Lorsque i et I sont de même signe, on obtient bien ce à quoi on s'attend et le shift sature bien autour de 4 * 10^{-4} b*. En revanche, quand l'onde est piégée, on observe que la déformation s'annule près de 3 et reste fixe près de 2.

Sur la figure 6.6 près de l'électrode 3, on peut voir que le déplacement du pic satellite pour i > 0 est en sens inverse (*i.e.* de signe opposé) à celui pour i< 0, ce qui signifie bien que par exemple à l'électrode où les électrons se condensaient en ODC pour i > 0, on a maintenant que l'ODC se décondense en porteurs normaux lorsqu'on change le sens du

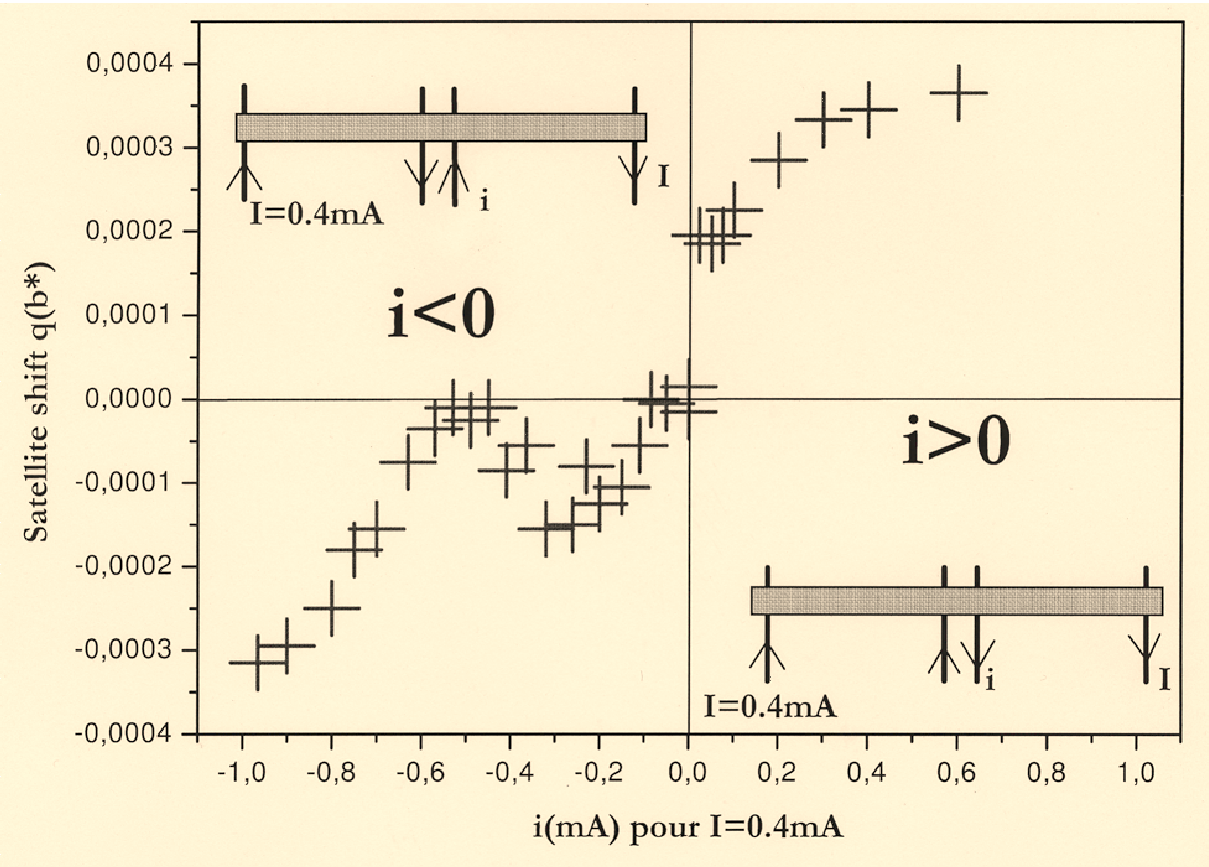


Fig. 6.6: Shift d'un pic satellite prés de l'électrode 3 à 100K. Le courant I est fixe et vaut 0,5 mA. On observe que lorsque l'onde se repiége le shift retourne à 0.

courant. Pour un courant i tel que $I + i_{th} > |i| > I + i_{th} - 2I_{th}$, où l'ODC est dépiégée, le satellite revient à sa position pour $i = 0$, c'est à dire que plus aucune conversion n'a lieu à cette position. Enfin, pour $|i| > I + i_{th}$, la déformation réapparaît, est de même signe qu'avant piégeage et sature assez vite autour de $4 * 10^{-4}$ b*.

Près de l'électrode 2 (voir figure 6.7), on constate tout d'abord que le signe de la déformation par rapport à l'électrode 3 est de signe opposé pour un même courant i. Ceci prouve bien qu'une électrode convertit les électrons normaux en ODC alors que l'autre fait le contraire. Ensuite, la déformation semble constante (dans la limite des barres d'erreurs) lorsque l'onde est piégée. Enfin pour $|i| > I + i_{th}$, la déformation semble augmenter mais lentement et ne dépasse pas $2 * 10^{-4}$ b*.

Cette différence de comportement entre les électrodes peut être interprétée de deux manières différentes :

- soit l'intérieur et l'extérieur du segment 2-3 ont un comportement totalement différent. A l'extérieur, l'onde ressent l'électrode 2 comme une électrode injective habi-

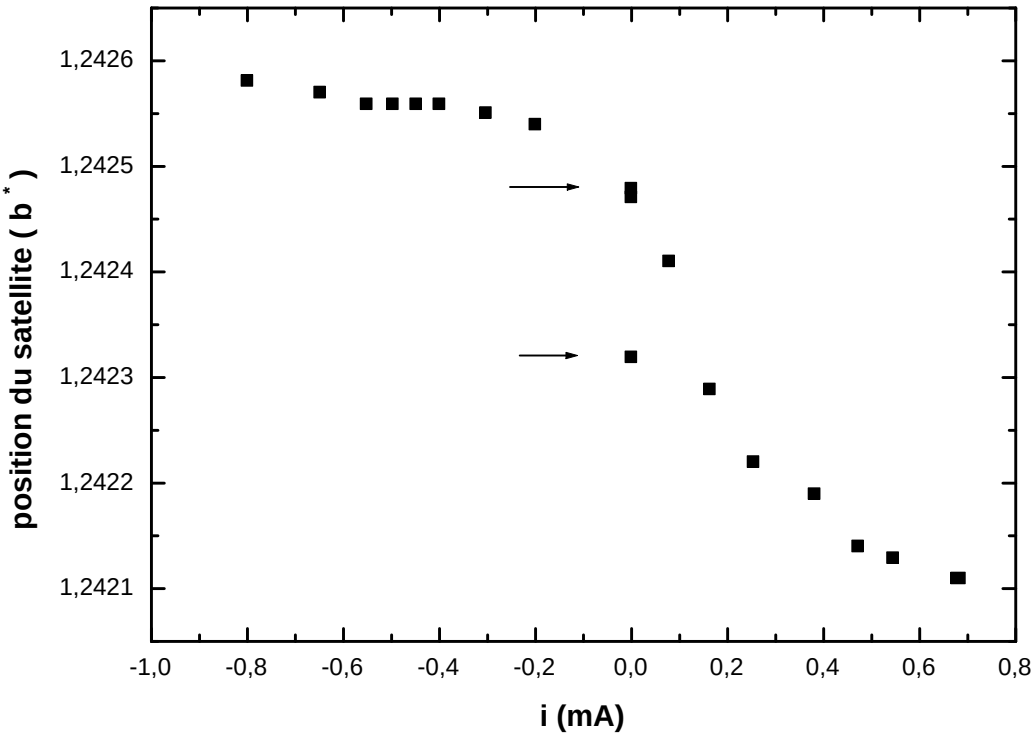


FIG. 6.7: Position d'un pic satellite prés de l'électrode 2 à 100 K. Le courant I est fixe et vaut 0,5 mA. On observe que lorsque l'onde se repiège, le shift ne varie plus. La flèche du haut indique la position du satellite pour i = 0 et I = 0,6 mA, la flèche du bas indique la position du satellite pour i = 0 et I = 0 .

tuelle et se déforme en fonction de la conversion. A l'intérieur, lorsque $I + i_{th} > |i| > I + i_{th} - 2I_{th}$, l'onde n'est plus fixée à ses extrémités puisque la nucléation de phase slip est possible en 2 et 3. Dans ces conditions, sachant de plus que le champ électrique est de l'ordre du champ de piégeage par impuretés, l'onde doit être instable. Il se peut donc que le système préfère expulser les déformations pour les faire se concentrer uniquement à l'électrode. De plus, dans le cas usuel où les déformations s'étendent au-delà des électrodes (*i.e.* dans les zones où l'onde est piégée), il y a un contre-courant d'électrons normaux fixé par l'ODC, alors qu'ici, le courant d'électrons normaux est fixé par une source externe, ce qui peut affecter le comportement de l'onde.

– soit l'électrode 2 se comporte normalement alors que l'électrode 3 est perturbée par un défaut. Cette hypothèse est étayée par le fait que près de l'électrode 3, les pics satellites sont nettement moins intenses et par le fait, que la déformation saute brutalement pour $i > 0$ comme s'il y avait une sorte de bistabilité à l'électrode. L'impureté

jouerait alors le rôle d'une barrière, qui dans le cas où l'onde est piégée entre 2 et 3, stopperait brutalement le courant de l'onde venant de l'extérieur.

En conclusion, une expérience supplémentaire s'avère nécessaire pour départager ces deux hypothèses et savoir si la déformation à une électrode est vraiment fonction de la différence de courant de part et d'autre de l'électrode.

6.2 Coexistence de deux ODC de modulation différente

$NbSe_3$ a la particularité de subir deux transitions de Peierls à $T_{p1} = 145K$ et $T_{p2} = 59K$. Cela signifie qu'en dessous de T_{p1} des porteurs sont condensés en deux ondes de vecteur $2k_F$ différents. La possibilité d'avoir deux ondes vient probablement du fait que $NbSe_3$ possède plusieurs bandes de conduction qui n'ont pas toutes le même vecteur de Fermi. Il est supposé, en général, que ces deux ondes n'interagissent pas. En effet, le champ seuil de l'onde haute température (HT) augmente lorsque la température diminue à partir de 120 K et le saut de résistance dû au dépiégeage de l'onde diminue. Ainsi, souvent à partir de 59 K, l'onde HT n'est plus dépiégeable à moins de fournir un courant tel que l'échantillon s'échaufferait et la non-linéarité qu'elle apporterait serait de toute façon indétectable ($\ll 1$ %). A cela s'ajoute le fait que l'onde basse température (BT) a des champs seuils typiques beaucoup plus petits que ceux de l'onde HT et que le saut de résistance est également plus grand ~ 50 % contre 10 à 20 % au mieux à 120 K pour l'onde HT.

6.2.1 Premières observations d'une possible interaction entre les deux ODC de $NbSe_3$

Des mesures en courant pulsé permettent de s'affranchir des problèmes de chauffage car l'échantillon est chauffé pendant moins longtemps. Richard *et al.* [66] observèrent ainsi deux décrochages dans la courbe de résistivité en fonction du champ électrique pour différentes températures. Ils attribuèrent le premier décrochage à l'onde HT et le deuxième décrochage à l'onde BT. Ils constatèrent que le deuxième décrochage se fait à la même valeur de champ électrique quelque soit la température et qu'à basse température les deux champ seuils se rejoignent et ne peuvent plus être séparés, signe que les deux ondes sont accrochées. Cependant, on peut reprocher aux mesures pulsées d'être peu précises car le dépiégeage n'est pas toujours brutal et donc le champ seuil est difficilement distinguable.

Comme la mise en mouvement d'une ODC génère du bruit (BBN et NBN, voir le

paragraphe 1.1), il est possible de définir un champ seuil comme le champ pour lequel le bruit apparaît (voir figure 6.12 pour une mesure typique de bruit dû au mouvement de l'ODC). Fleming [16] mesura, à l'aide d'un amplificateur de bande passante de 75 kHz, les variations du champ seuil E_{c1} de l'onde HT pour différentes températures. Il constata, qu'effectivement, on pouvait dépiéger l'onde HT en même temps que l'onde BT mais que E_{c1} n'est pas constant, qu'il augmente lorsque T diminue et qu'il ne rejoint pas E_{c2} (voir figure 6.8).

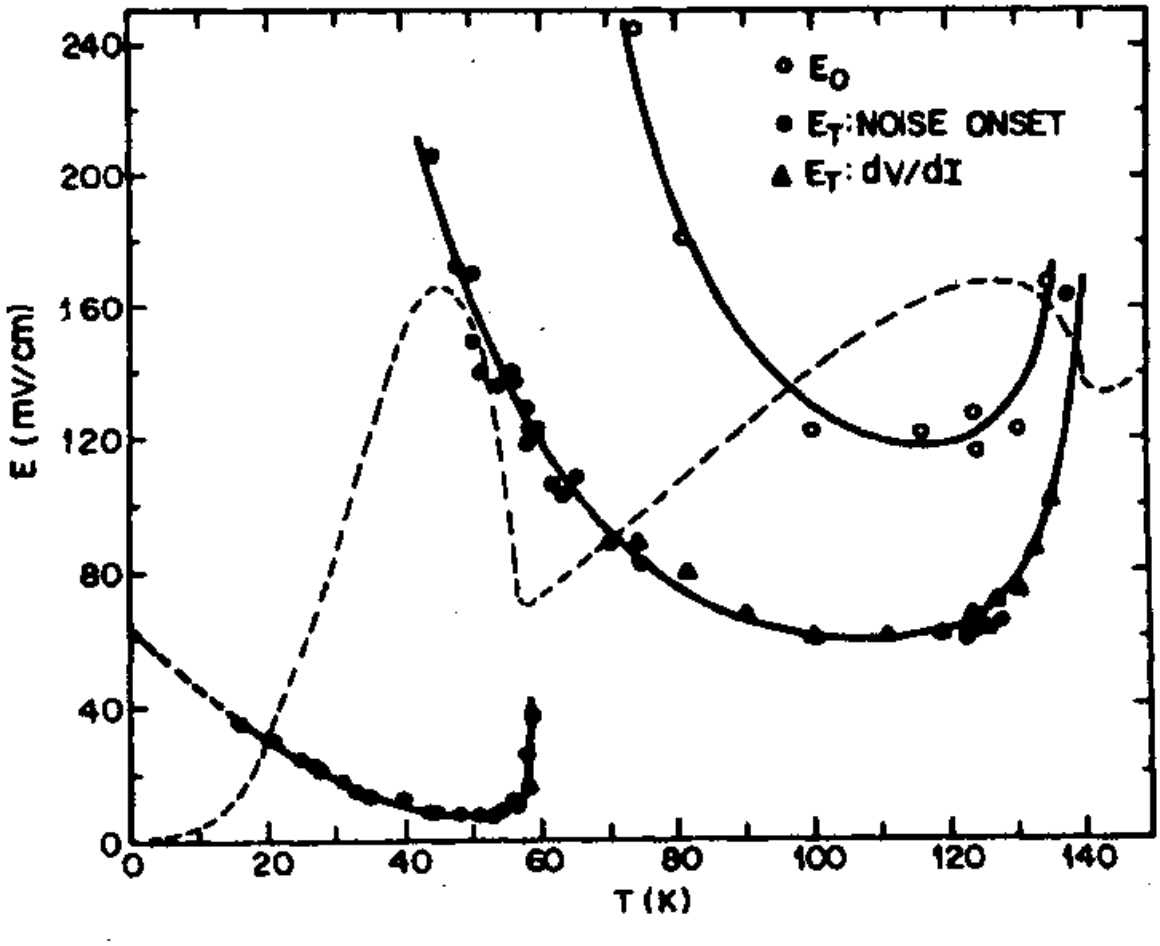


FIG. 6.8: Variation des champs seuils des deux ondes dans $NbSe_3$ en fonction de la température selon la ref. [16]. Entre 42 et 59 K, deux champs seuils ont été identifiés. Les ronds noirs sont les champs seuils détectés par des mesures de bruit et les triangles noirs donnent les champs seuils d'après les mesures de résistance différentielle (E_0 est un paramètre déduit d'un fit des courbes de dépiégeage), la courbe en pointillé représente les variations de de la résistance de l'échantillon en fonction de la température.

Richard *et al.* effectuèrent, alors, eux aussi, des mesures de bruit et obtinrent que le champ seuil de l'onde HT de leurs échantillons chute brutalement à l'apparition de l'onde BT, puis reste constant. (voir figure 6.9)

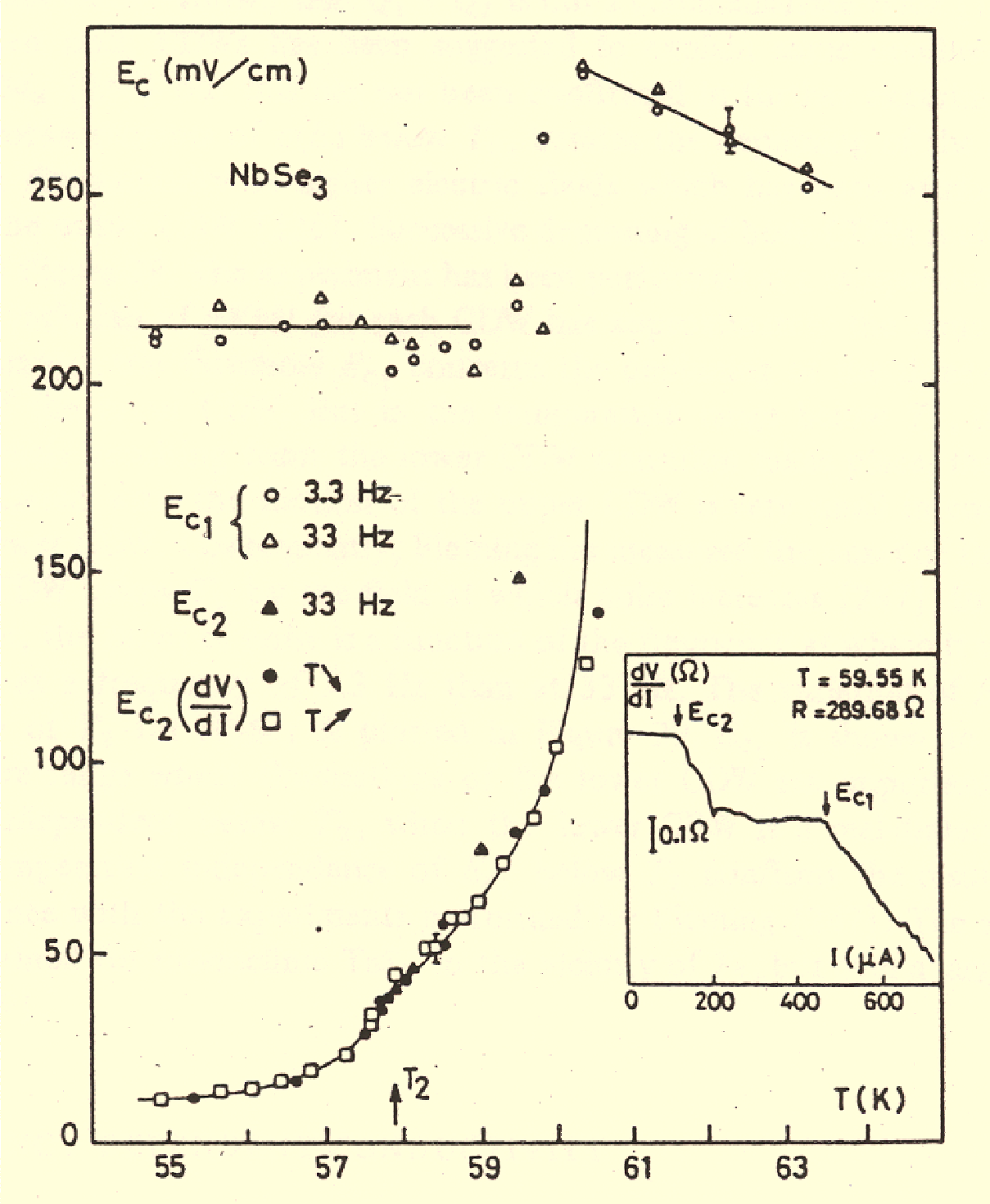


Fig. 6.9: Variation des champs seuils des deux ondes dans $NbSe_3$ selon la ref. [48].

Le fait qu'il n'y ait pas de consensus expérimental vient de la difficulté des mesures, même pour les mesures de bruit. En effet, il convient de signaler que les mesures de bruit ne sont pas non plus une mesure complètement fiable du champ seuil. Le champ seuil pour lequel le bruit apparaît dépend de la fréquence que l'on sélectionne. Le bruit apparaît

d'abord dans les basses fréquences (3 Hz), mais est de faible amplitude. Lorsque Fleming mesure sur une large bande (75 kHz), il augmente le niveau de bruit moyen et masque l'apparition de bruit à 3 Hz.

6.2.2 Anomalies de variation du champ seuil dans un échantillon mésoscopique

L'échantillon en forme de H présenté aux chapitres 2 et 3 a un comportement singulier au voisinage de la transition BT. Des mesures de champ électrique de dépiégeage ont été effectuées à l'aide d'un nanovoltmètre et d'une source de courant DC pour effectuer des courbes I(V) que l'on dérive numériquement pour mieux discerner le champ seuil. L'inconvénient de la dérivation numérique est qu'elle augmente le bruit apparent mais une mesure directe dV/dI à l'aide d'un pont alternatif était impossible à cause de la trop forte impédance des contacts rendant impossible l'équilibrage du pont.

Pour 70 K $<$ T $<$ 145 K, on observe une variation normale du champ seuil E_{c1} de l'onde HT, c'est à dire, que le champ seuil augmente lorsque l'on s'approche de la transition, a un minimum autour de 130 K, puis augmente lorsque la température diminue. De même, pour 35 K $<$ T $<$ 59 K, le champ seuil E_{c2} de l'onde BT se comporte normalement. En revanche, dans la zone intermédiaire, E_{c1} semble diverger vers 64.7 K puis 0.2 K plus bas, on peut mesurer deux champs seuils sur une plage de température de 2 K (voir figure 6.10). On constate que E_{c1} est à peu près constant alors que le nouveau champ seuil $E_{c?}$ décroît rapidement. Enfin, à plus basse température, E_{c1} n'est plus mesurable et $E_{c?}$ ne varie plus. Lorsque E_{c2} apparaît, il devient impossible de repérer $E_{c?}$ car la chute de résistance liée à $E_{c?}$ est inférieure au % alors que celle liée à E_{c2} est proche de 50 %. Cette apparition d'un champ seuil intermédiaire $E_{c?}$ n'avait jamais été observé. Somme toute, elle est spécifique de cet échantillon et de son process en salle blanche. Cependant, cet échantillon semble indiquer qu'il existe bien une zone de température où les deux ondes interragissent et modifient leurs champs seuils.

6.2.3 Première approche par diffraction

L'expérience précédente, avec l'apparition d'un champ seuil $E_{c?}$ d'origine inconnue, illustre le fait que les mesures de transport toutes seules sont incapables de discerner les deux ondes. En effet, l'onde BT et l'onde HT génèrent toutes deux un bruit et font dimi-

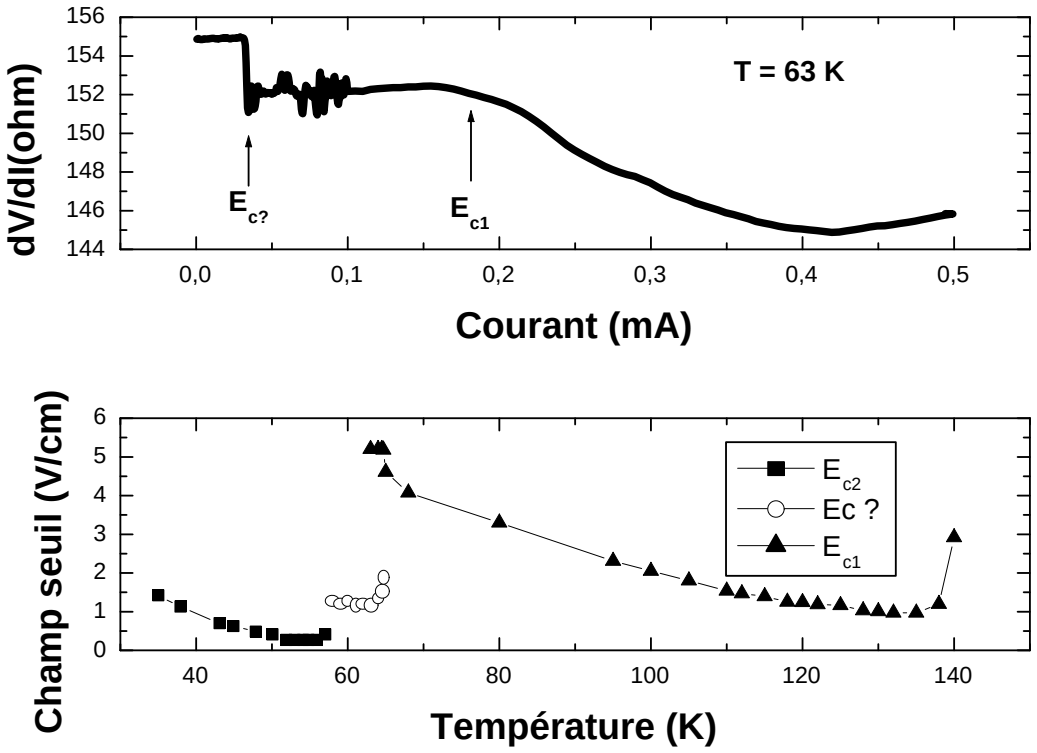


Fig. 6.10: En haut : courbe de dépiégeage à T = 63 K, comportant deux champs seuils. En bas : variation des champs seuils des deux ondes en fonction de la tempérautre dans un échantillon mésoscopique de $NbSe_3$.

nuer la résistance de l'échantillon lorsqu'elles sont en mouvement. La seule chose qui les distingue étant leur vecteur de surmodulation et celui-ci étant sensible au mouvement de l'onde, des mesures couplées rayons-X/transport semble le seul moyen de prouver l'existence d'une interaction entre les deux ondes. Par le passé, il avait été prouvé que la position du pic satellite de l'onde HT $Q_1 = (0\,;\,0{,}244\,;\,0)$ dans l'état piégé n'était pas affectée par la transition $T_{p2} = 59$ K [52]. Cependant, le fait que $2(Q_1+Q_2)\simeq(1\,;1\,;1)$ car $Q_2 = (1/2\,;\,0{,}26\,;\,1/2)$ suggère qu'un couplage entre Q_1 et Q_2 pourrait amener les deux ondes à s'accrocher ensemble à la position commensurable $(1\,;\,1\,;\,1)$ [11].

Ainsi, le groupe de Cornell [38] entreprit d 'étudier Q_1 et Q_2 à basse température (T = 35 K), avec comme idée que le possible dépiégeage de Q_1 à basse température pourrait être rapproché des phénomènes de switching (voir paragraphe 4.2.3). Ils mesurèrent les deux satellites dans la direction $\overrightarrow{a^*}$ d'un échantillon présentant du switching ou du moins des sauts brusques dans la courbe dV/dI(I). Ils définirent deux champs seuils : E_T provenant

du dépiégegage de l'onde BT et marquant l'apparition d'un BBN et E_T^* lié au premier saut brusque dans la courbe dV/dI(I) et lié, selon eux, au switching. Ils observèrent alors que le satellite de l'onde BT se déforme et devient plus large à partir de E_T, mais ne marque pas de rupture de comportement pour E_T^*. En parallèle, le satellite de l'onde HT ne se déforme pas à E_T et commence à s'élargir à partir de E_T^*. Leurs conclusions sont donc, que le switching est lié au dépiégeage de Q_1 et que pour que Q_1 se dépiège à ces températures, il doit y avoir un couplage entre Q_1 et Q_2.

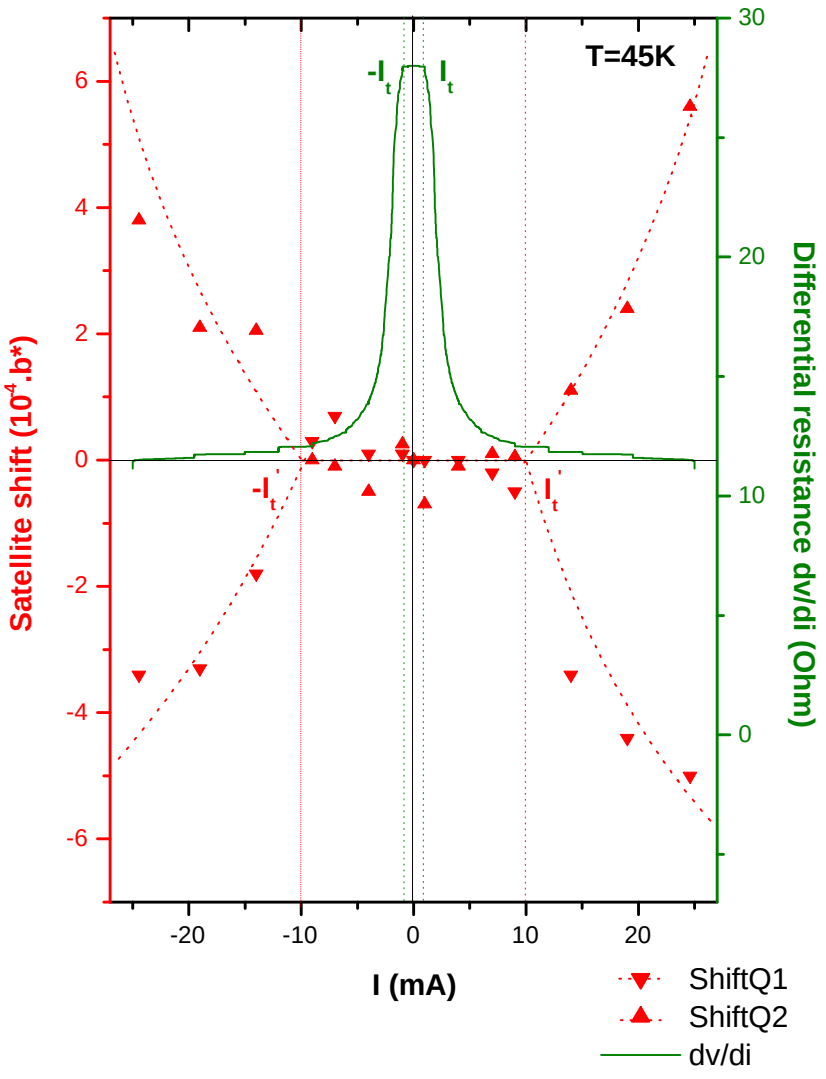


FIG. 6.11: Déplacement des pics satellites Q_1 (▼)et Q_2 (▲) et résistance différentielle en fonction du courant continu appliqué à un échantillon de $NbSe_3$ à T = 45 K.

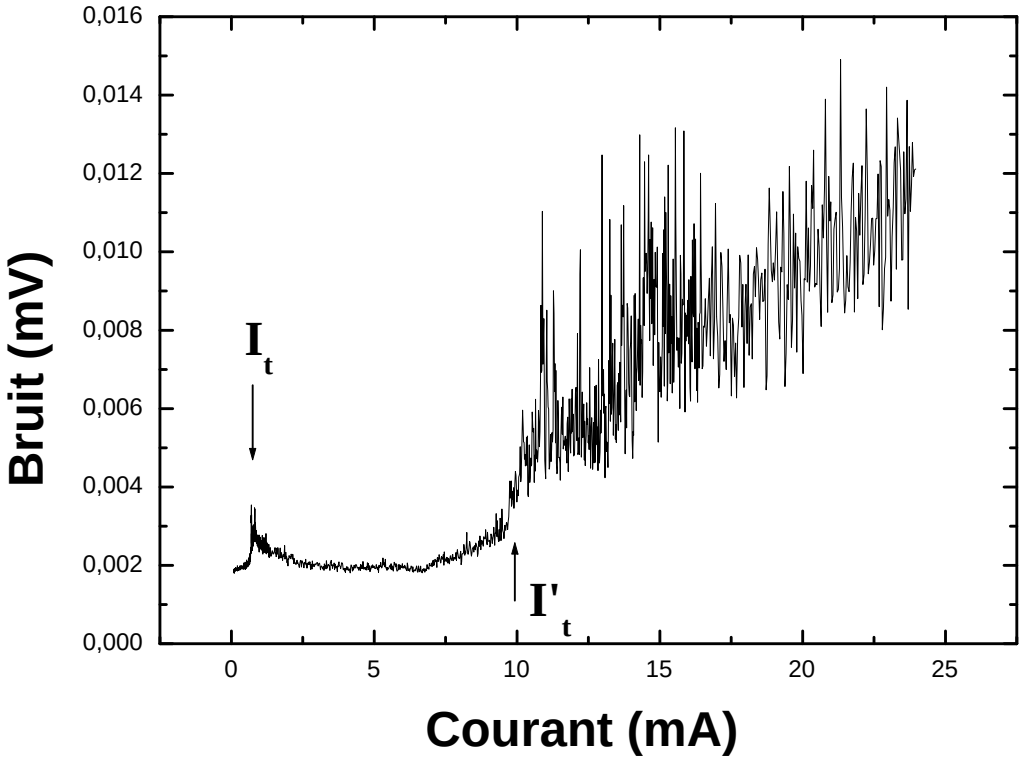


Fig. 6.12: Broad band noise (BBN) en fonction du courant continu de l'échantillon de $NbSe_3$ mesuré à l'ESRF à T = 45 K. On distingue nettement de seuil d'augmentation du bruit.

6.2.4 Deuxième approche par diffraction

Nous avons poursuivi les mesures précédentes, mais en scannant les pics satellites dans la direction longitudinale avec un échantillon ne présentant pas de switching. Ainsi, il est possible de vérifier si l'effet précédent est vraiment dû au switching. De plus, la direction longitudinale donne plus d'informations quant aux propriétés de transport (telle que la conversion de porteurs en ODC par exemple). Enfin, s'il doit y avoir un accrochage avec la position (1 ; 1 ;1), Q_1 et Q_2 doivent alors se déplacer suivant la direction longitudinale. Nos mesures ont montré que les deux satellites se déplacent pour une gamme de température plus grande que celle où a lieu le switching et qu'il n'y avait pas besoin de switching pour que cet effet existe. Nous avons étudié trois positions (les deux électrodes d'injection de courant et une position au centre de l'échantillon) et constaté que les déplacements des pics satellites peuvent atteindre des valeurs nettement plus élevées qu'à 90 K. Bien que nos mesures semblent faussées au niveau des électrodes à cause de défauts d'irradiation, nous

avons pu déduire des mesures au centre de l'échantillon que pour T = 45 K par exemple (voir figure 6.11) les deux satellites ne bougent pas avant un courant I'_t, 10 fois supérieur au courant seuil I_t. Passé ce courant I'_t, les deux satellites se déplacent en sens inverse, en maintenant la valeur de $Q_1 + Q_2$ approximativement constante et ce, indépendamment de la polarité du courant.

Nous avons tenté de rapprocher le dépiégeage à I'_t des mesures de bruit de Richard *et al.* [48]. Pour se faire, nous injectons du courant avec une source faible bruit sur batteries et la tension aux bornes de l'échantillon est amplifiée 1000 fois par un PAR 113 sur une gamme de fréquence allant de 1 Hz à 1kHz. Le signal est ensuite recueilli par un voltmètre rms qui fournit à sa sortie analogique une tension continue dont l'amplitude est proportionnelle à la moyenne quadratique du bruit. On observe (voir figure 6.12) qu'il y a bien deux seuils à partir desquels le bruit augmente, et ce, sur une large gamme de température.

A 45 K, la valeur du deuxième courant seuil correspond approximativement à la valeur du courant où les deux satellites se déplacent. Cependant, une comparaison précise n'a pu être effectuée, car l'échantillon ne possède que deux contacts, il est donc impossible de s'affranchir de la résistance des contacts. Cette résistance de contact est d'ailleurs assez élevée (au moins 10 % de la résistance mesurée) et très instable (car le contact n'est maintenu que par du collodion), notamment près de la température de transition T_{p2}. Nous n'avons donc pu suivre en température l'évolution du deuxième champ seuil et verifier s'il rejoignait le champ seuil de la première transition lorsque l'on traverse T_{p2}.

6.2.5 *Discussion et perspectives*

Ces résultats suggèrent tout d'abord que le déplacement du satellite de l'onde HT à basse température ne vient pas du switching ou alors que le switching doit être reconsidéré et ne serait que la manifestation brutale d'un phénomène existant déjà dès la transition. Ensuite, le fait que les deux satellites se déplacent en sens inverse semble indiquer un transfert de charges d'une onde vers l'autre. En effet, la densité de porteurs est liée à $2k_F$ qui est lui-même lié à la position du pic satellite. On peut imaginer que l'onde BT se mette en mouvement au moment où la résistance différentielle chute, puis entraîne l'onde HT en lui injectant des porteurs pour diminuer son champ seuil.

Cependant, une nouvelle expérience est nécessaire pour confirmer ce scénario. Il serait d'ailleurs préférable d'étudier le comportement de l'onde BT, avant que l'onde HT ne se

dépiège et de savoir s'il y a un déplacement du pic satellite comparable à celui observé à haute température. D'autant qu'à basse température, le nombre de porteurs normaux participant à l'écrantage est beaucoup plus faible et donc la constante élastique effective doit être différente (voir paragraphe 5.2.2). Il serait bon aussi que l'échantillon soit en 4 fils et de RRR élevé afin de réduire les problèmes de chauffage notamment vers T_{p2} où les champs seuils sont élevés. Enfin, on pourrait envisager d'effectuer *in situ* les mesures de bruit et de les comparer en direct avec les mouvements des satellites.

6.3 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons revisité des phénomènes d'interaction entre deux ODC par des mesures de diffraction. A haute température, nous avons vu que l'interaction entre deux ODC voisines était transmise par les forces élastiques du condensat comme l'avaient laissé entrevoir des mesures de NBN et tel que l'ont confirmé nos mesures aux rayons X. En revanche, les mesures de diffraction semble indiquer qu'il y a peut-être un phénomène d'expulsion des phase-slip pour les zones soumises à un champ électrique inférieur au champ seuil. Enfin, à basse température, nous avons établi l'existence d'une interaction entre les deux ODC de $NbSe_3$, qui pourrait amener à reconsidérer l'interprétation des phénomènes de switching.

Conclusion

Au cours de cette thèse, nous avons constaté que l'étude des propriétés mésoscopiques des ODC était confrontée à un certain nombres d'obstacles :

- Tout d'abord, en plus de la nécessité d'adapter aux ODC les process de salles blanches mis au point pour les couches minces, comme nous l'avons vu au chapitre 2, il faut faire face à la fragilité des matériaux à ODC (qui comportent souvent des liaisons faibles type Van Der Walls) vis-à-vis de certains supplices tels que la RIE, le FIB et tous les solvants en libre circulation en salle blanche. Ces mauvais traitements altèrent la qualité des échantillons, comme nous l'avons constaté au chapitre 4, ce qui nous permet certes d'étudier l'influence de défauts et du désordre sur des échantillons à ODC de petites tailles, mais ce qui nous éloigne de la recherche d'effets de cohérence et rend les mesures assez peu reproductibles. En effet, il faut bien reconnaître que pour l'instant, il n'y a pas de manifestation spectaculaire ou intangible de la cohérence quantique d'une ODC.
- Ensuite, l'injection du courant dans ces matériaux peut amener à des résultats biaisés par des inhomogénéités de courant liées à l'anisotropie de la conductivité. Ainsi, au chapitre 3, nous avons montré que les résultats sur le "current effect transistor" étaient incorrects et que l'application d'un champ transverse au mouvement d'une ODC n'avait aucun effet sur le champ seuil.
- Enfin, l'idée d'étudier les ODC sur des échantillons de plus en plus petits, dans la perspective par exemple, d'aboutir à un liquide de Luttinger, est peut-être vouée à l'échec, car il est fort à craindre que les effets de surface, où l'onde est très endommagée, vont alors dominer sur les effets de volume.

En revanche, il s'avère au travers des chapitres 5 et 6 que les rayons X sont un outil puissant et complémentaire des mesures de transport pour étudier, à la fois localement et sur de grandes distances, des propriétés de cohérence et d'interaction des ODC. Nous avons ainsi pu démontrer qu'un accroissement de la cohérence temporelle de vitesse dans une ODC était accompagnée d'une augmentation de la cohérence spatiale, ce qui révèle clairement pour la première fois le lien étroit entre ces deux cohérences.

Annexe

A.1 Données techniques du process d'élaboration d'un échantillon de type H dans $NbSe_3$

A.1.1 amincissement

RIE par le process nommé "NBT" avec un débit de 20 cm^3 de SF_6, une pression résiduelle de $2*10^{-2}$mbar et une radiofréquence de puissance de 20 W.

A.1.2 collage

Au départ, l'échantillon est posé sur un saphir et fixé aux deux extrémités par du collodion (2 % d'éthyl cellulose dilué dans 98 % de buthyl acétate). Le collage se fait par capillarité (pince brucelle sous binoculaire), à l'aide de la colle M610 diluée à l'acétone. On met 10 gouttes (avec pipette) dans un petit bêcher, on le remplit au 3/4 avec de l'acétone. Ensuite, on pose une goutte sur le saphir près de l'échantillon. On recuit la colle à 150 ° C pendant 1 H 00 sur HOT plate bioblock en montant progressivement la température.

Nous avons constaté qu'il était préférable de coller l'échantillon après amincissement. Sinon, la surface du $NbSe_3$ se dégrade beaucoup plus vite pendant la gravure sous SF_6 (probablement à cause de résidu de colle). Le masque est alors granuleux et le dépôt d'or n'adhère, ni à l'échantillon, ni au substrat.

On retire la colle superflue en RIE par le process nommé "RES" avec un débit de 20 cm^3 de SF_6, une pression résiduelle de $2*10^{-1}$mbar et une radiofréquence de puissance de 50 W.

A.1.3 tricouche

- Étalement PMMA 5 % (de chlorobenzène 950 000K) à 2000 tours par minute pendant 30 sec. On obtient une couche de 6600 Å d'épaisseur. Puis, on recuit 10 minutes à 160°C.
- Dépot 40 nm Ge.
- Étalement PMMA 2 % (de chlorobenzène 950 000K) à 4000 tours par minute pendant 30 sec. On obtient une couche de 1100 Å d'épaisseur. Puis, on recuit 5 minutes à 130°C.

A.1.4 insolation

On utilise le support donnant la plus forte résolution (15 mm) et la résolution 12 en courant. On trouve d'abord les extrémités de l'échantillon, puis on corrige l'angle entre le faisceau et l'échantillon manuellement.

A.1.5 développement

Tremper l'échantillon dans les 3 solutions suivantes :
- d'abord une solution contenant un volume de méthylisobutylcétone (MIBK) pour 3 volumes d'isopropanol pendant 10 secondes.
- ensuite une solution d'isopropanol pour stopper le développeur, pendant quelques secondes.
- enfin une solution d'isopropanol pour nettoyer pendant 15 secondes.

A.1.6 le masque

- RIE SF_6 process "Si 15"" avec wafer 4" .
- RIE oxygène 5 minutes.
- Dépôt 40nm Al dans bâti n°2.
- Lift-off dans acétate de cellosolve (Ether monoéthylique de l'éthylèneglycole acétate 2-ethoxyéthylacétate) pendant 45 min à 80°C sur grosse plaque chauffante. Toutes les 10 minutes faire de la convection et des bulles avec une pipette.
- Gravure RIE SF_6 par "Nbt" 10/15 min.
- Retrait Al sous une binoculaire avec MF319 entre une minute et 1 min 30 (attendre la disparition totale de l'Al plus 15 secondes), puis tremper 5 minutes dans l'eau DI sans agiter et enfin laisser sécher surtout sans soufflette (risque de décollement de l'échantillon) .

A.1.7 les contacts

- Évaporation Ti/Au sur 5000 Å partiellement sous angle +/-45°.
- Étalement résine S1818 4000 tours/min pendant 30 secondes. Recuit 115°C pendant 1 min.
- Insole avec le petit microscope Zeiss éclairage maximum et atténuateur maximum pendant 3 minutes
- Développement dans une solution contenant pour 50 % du "développeur concentrate" et 50% eau DI pendant 1 min 30 sec, puis rince dans eau DI (déionisée).
- Gravure KI pendant $\backsim$ 1 min, puis rincage à l'eau DI.
- Gravure au HF dilué à quelques pourcents dans eau DI, pendant 15 secondes, puis rinçage à l'eau DI.

Bibliographie

[1] T. L. Adelman, S. V. Zaitsev-Zotov, and R. E. Thorne. *"Field-effect modulation of charge-density-wave transport in $NbSe_3$ and TaS_3"*. *Phys. Rev. Lett.*, **74** *(26) : p. 5264, June 1995.*

[2] Y. Aharonov and D. Bohm. *"Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory"*. *Phys. Rev.*, **115** *(3) : p. 485, August 1959.*

[3] S. N. Artemenko and S. V. Remizov. *"Character of electron reflection at normal metal-peierls semiconductor boundary"*. *JETP letter*, **65** *: p. 53, January 1997.*

[4] S. N. Artemenko, S. V. Zaitsev-Zotov, V. E. Minakova, and P. Monceau. *"Convective terms and transversely driven charge-density waves"*. *Phys. Rev. Lett.*, **84** *(22) : p. 5184, May 2000.*

[5] J. Bardeen. *"Theory of non-ohmic conduction from charge-density waves in $NbSe_3$"*. *Phys. Rev. Lett.*, **42** *(22) : p. 1498, May 1979.*

[6] J. Bardeen. *"Tunneling theory of charge-density-wave depinning"*. *Phys. Rev. Lett.*, **45** *(24) : p. 1978, December 1980.*

[7] J. Bardeen. *"Macroscopic quantum tunneling in quasi one-dimensional metals. ii. theory"*. *Phys. Rev. Lett.*, **55** *(9) : p. 1010, August 1985.*

[8] S. Bhattacharya, J. P. Stokes, M. J. Higgins, and R. A. Klemm. *"Temporal coherence in the sliding charge-density-wave"*. *Phys. Rev. Lett.*, **59** *(16) : p. 1849, October 1987.*

[9] S. Brazovskii. *"A general approach to charge/spin density waves"*. *J. Phys I*, **3** *: p. 2417, December 1993.*

[10] S. Brazovskii, N. Kirova, H. Requardt, F. Ya. Nad, P. Monceau, R. Currat, J. E. Lorenzo, G. Grubel, and Ch. Vettier. *"Plastic sliding of charge density wave : X-ray space resolved studies versus theory of current conversion"*. *Phys. Rev. B*, **61** *(16) : p. 10640, April 2000.*

[11] R. Bruinsma and S. E. Trullinger. *"Phase-locked charge-density waves in $NbSe_3$"*. *Phys. Rev. B*, **22** *(10) : p. 4543, November 1980.*

[12] R. Danneau, A. Ayari, D. Rideau, H. Requardt, J.E. Lorenzo, L. Ortega, P. Monceau, R. Currat, and G.Grubel. *"Motional oredering of a charge-density wave in the sliding state"*. *Phys. Rev. Lett.*, **89** *(10) : p. 106404, September 2002.*

[13] D. DiCarlo, E. Sweetland, M. Sutton, J. D. Brock, and R. E. Thorne. *"Field-induced charge-density-wave deformations and phase slip in $NbSe_3$"*. *Phys. Rev. Lett.*, **70** *(6) : p. 845, February 1993.*

[14] D. DiCarlo, R. E. Thorne, E. Sweetland, M. Sutton, and J. D. Brock. *"Charge-density-wave structure in $NbSe_3$"*. *Phys. Rev. B*, **50** *(12) : p. 8288, September 1994.*

[15] A. T. Fiory. *"Quantum interference effects of a moving vortex lattice in al films"*. *Phys. Rev. Lett.*, **27** *(8) : p. 501, August 1971.*

[16] R. M. Fleming. *"Electric-field depinning of charge-density waves in $NbSe_3$"*. *Phys. Rev. B*, **22** *(12) : p. 5606, December 1980.*

[17] H. Frohlich and P. A. Lee. *"On the theory of superconductivity : the one-dimensional case"*. *Proc. Roy. Soc. Ser. A, (223) : p. 296, 1954.*

[18] H. Fukuyama and P. A. Lee. *"Dynamics of the charge-density waves. i. impurity pinning in a single chain"*. *Phys. Rev. B*, **17** *(2) : p. 535, January 1978.*

[19] P. G. De Gennes. *Superconductivity of metals and alloys. W. A. Benjamin, 1966.*

[20] T. Giamarchi and S. Bhattacharya. *"Vortex phases"*. *cond-mat/0111052.*

[21] J. C. Gill. *Solid State Commun.*, **39** *: p. 1203, 1981.*

[22] L. P. Gorkov and G. Gruner. *Charge Density wave in solids, volume 25. Elsevier Science, Amsterdam, 1989.*

[23] K. E. Gray and C. J. Adkins A. R. Long, and. *Phil. Mag.*, **20** *: p. 273, 1969.*

[24] G. Gruner. *Rev. Mod. Phys.*, **60** *: p. 1129, 1988.*

[25] G. Gruner. *Density wave in solids. Addison-Wesley Reading, 1994.*

[26] R. P. Hall, M. F. Hundley, and A. Zettl. *"Switching and charge-density-wave transport in $NbSe_3$. i. dc characteristics"*. *Phys. Rev. Lett.*, **38** *(18) : p. 13002, December 1988.*

[27] R. P. Hall and A. Zettl. *"Role of current oscillations in ac-dc interference effects in $NbSe_3$"*. *Phys. Rev. B*, **30** *(4) : p. 2279, August 1984.*

[28] M. Inui, R. P. Hall, and S. Doniach. *"Phase slips and switching in charge-density-wave transport"*. *Phys. Rev. B*, **38** *(18) : p. 13047, December 1988.*

[29] M. E. Itkis, B. M. Emerling, and J. W. Brill. *"Imaging charge-density-wave strains with electromodulated transmission". Phys. Rev. B,* **52** *(16) : p. 11545, October 1995.*

[30] A. L. Kasatkin, E. A. Pashitskii, and N. Gronbech-Jensen. *"Reflection of quasiparticules from inhomogeneities of charge density waves in low-dimensional conductors". Sov. Phys. Solid State,* **27** *(8) : p. 1448, August 1985.*

[31] A. B. Kolton, D. Dominguez, and N. Gronbech-Jensen. *"Mode locking in ac-driven vortex lattices with random pinning". Phys. Rev. Lett.,* **86** *(18) : p. 4112, April 2001.*

[32] Yu. I. Latyshev, P. Monceau, O. Laborde, and B. Pannetier. *"Charge density wave mesoscopy". Synthetic Metals,* **103** *: p. 2582, 1999.*

[33] Yu. I. Latyshev, B. Pannetier, and P. Monceau. *"Charge density wave transport in submicron antidot arrays in $NbSe_3$". Europ. Phys. Journ. B,* **3** *: p. 421, 1998.*

[34] P. A. Lee and T. M. Rice. *"Electric field depinning of charge density waves". Phys. Rev. B,* **19** *(8) : p. 3970, April 1979.*

[35] S. G. Lemay, K. O'Neill, C. Cicak, and R. E. Thorne. *"Spatially resolved study of charge-density-wave strain in $NbSe_3$: Evidence for a finite threshold for creep". Phys. Rev. B,* **63** *: p. 081102(R), February 2001.*

[36] S. G. Lemay, R. E. Thorne, M. C. Saint-Lager, and P. Monceau. *"Frequency locking and nonlocal transport in charge-density-wave conductors". Phys. Rev. B,* **54** *(23) : p. 16341, 1996.*

[37] S. G. Lemay, M. C. Lind van Wijngaarden, T. L. Adelman, and R. E. Thorne. *"Spatially distribution of charge-density-wave phase slip in $NbSe_3$". Phys. Rev. B,* **57** *(20) : p. 12781, 1998.*

[38] Y. Li, D. Y. Noh, J. H. Price, K. L. Ringland, J. D. Brock, S. G. Lemay, and and R. E. Thorne K. Cicak. *"Observation of dynamic coupling between the q_1 and q_2 charge-density waves in $NbSe_3$". Phys. Rev. B,* **63** *(4) : p. 041103, January 1999.*

[39] W. A. Little. *"Possibility of synthesizing an organic superconductor". Phys. Rev.,* **134** *(A6) : p. A1416, June 1964.*

[40] K. Maki. *"Creation of soliton pairs by electric fields in charge-density-wave condensates". Phys. Rev. Lett.,* **39** *(1) : p. 46, July 1977.*

[41] O. C. Mantel, F. Chalin, C. Dekker, H. S. J. van der Zant, Yu. I. Latyshev, B. Pannetier, and P. Monceau. *"Submicron structures of the charge-density-wave conductor $NbSe_3$". Synth. Met.,* **103** *: p. 2612, 1999.*

[42] O. C. Mantel, F. Chalin, C. Dekker, H. S. J. van der Zant, Yu. I. Latyshev, B. Pannetier, and P. Monceau. *"Charge-density-wave current conversion in submicron $NbSe_3$ wires". Phys. Rev. Lett.,* **84** *(3) : p. 538, January 2000.*

[43] O. C. Mantel, H. S. J. van der Zant, A. J. Steinfort, C. Dekker, A. C. Træholt, and H. W. Zandbergen. *"Thin films of the charge-density-wave oxide $RbMoO_3$ by pulsed-laser deposition". Phys. Rev. B,* **55** *(7) : p. 4817, February 1997.*

[44] N. Markovic, M. A. H. Dohmen, and H. S. J. van der Zant. *"Tunable charge-density wave transport in a current-effect transistor". Phys. Rev. Lett.,* **84** *(3) : p. 534, January 2000.*

[45] H. Matsukawa and M. Takayama. *J. Phys. Soc. Jpn,* **56** *: p. 1507, 1987.*

[46] J. H. Miller, G. Cardenas, A. Garcia, W. More, A. W. Beckwith, and J. P. McCarten. *"Soliton tunneling transistor". cond-mat, (0105409), 2001.*

[47] J. H. Miller, C. Ordóñez, and E. Prodan. *"Time-correlated soliton tunneling in charge and spin density waves". Phys. Rev. Lett.,* **84** *(7) : p. 1555, February 2000.*

[48] P. Monceau. *Electronic Properties of Inorganic Quasi One-Dimensional Compounds. Reidel, 1985.*

[49] P. Monceau, N. P. Ong, A. M. Portis, A. Meerschaut, and J. Rouxel. *"Electric field breakdown of charge-density-wave-induced breakdown in $NbSe_3$". Phys. Rev. Lett.,* **37** *(10) : p. 602, september 1976.*

[50] P. Monceau, J. Richard, and M. Renard. *"Interference effects of the charge-density-wave motion in $NbSe_3$". Phys. Rev. Lett.,* **45** *(1) : p. 43, July 1980.*

[51] H. C. Montgomery. *"Method for measuring electrical resistivity of anisotropic materials". J. Appl. Phys.,* **42** *(7) : p. 2971, June 1971.*

[52] A. H. Moudden, J. D. Axe, P. Monceau, and F. Levy. *"q_1 charge-density wave in $NbSe_3$". Phys. Rev. Lett.,* **65** *(2) : p. 223, July 1990.*

[53] G. Mozurkewich and G. Gruner. *"Volume dependence of current oscillations in $NbSe_3$: A finite-size effect". Phys. Rev. Lett.,* **51** *(24) : p. 2206, December 1983.*

[54] H. Mutka, S. Bouffard, J. Dumas, and C. Schlenker. *J. Phys. (Paris) Lett.,* **45** *: p. L729, 1985.*

[55] N. P. Ong. *"Two-band model for $NbSe_3$ (ohmic regime)". Phys. Rev. B,* **18** *(10) : p. 5272, November 1978.*

[56] N. P. Ong and J. W. Brill. *"Conductivity anisotropy and transverse magnetoresistance of $NbSe_3$". Phys. Rev. B,* **18** *(10) : p. 5265, November 1978.*

[57] N. P. Ong, G. Verma, and K. Maki. *"Vortex-array model for charge-density-wave conduction noise". Phys. Rev. Lett.,* **52** *(8) : p. 663, February 1984.*

[58] R. E. Peierls. *Ann. Phys,* **4** *: p. 121, 1930.*

[59] R. E. Peierls. *Quantum theory of solids, volume 108. Oxford University Press, 1955.*

[60] A. B. Pippard, J. G. Shepherd, and A. D. Tindall. *"Resistance of superconducting-normal interfaces". Proc. Roy. Soc. Lond. A,* **324**, *1971.*

[61] L. Radzihovsky and J. Toner. *"Transversely driven charge density waves and stripped phases of high-tc superconductors : The current effect transistor". Phys. Rev. Lett.,* **81** *(17) : p. 3711, October 1998.*

[62] S. Ramakrishnan, M. P. Maher, V. Ambegaokar, and U. Eckern. *"Phase slip in charge density wave systems". Phys. Rev. Lett.,* **68** *(13) : p. 2066, March 1992.*

[63] C. Reichhardt, A. B. Kolton, D. Dominguez, and N. Gronbech-Jensen. *"Phase-locking of driven vortex lattices with transverse ac force and periodic pinning". Phys. Rev. B,* **64** *: p. 134508, September 2001.*

[64] B. Rejaei and G. E. Bauer. *"Collective transport through charge-density-wave heterostructures". Phys. Rev. B,* **54** *(12) : p. 8487, September 1996.*

[65] H. Requardt, F. Ya. Nad, P. Monceau, R. Currat, J. E. Lorenzo, S. Brazovskii, N. Kirova, G. Grubel, and Ch. Vettier. *"Direct observation of charge density wave current conversion by spatially resolved synchrontron x-ray studies in $NbSe_3$". Phys. Rev. Lett.,* **80** *(25) : p. 5631, June 1998.*

[66] J. Richard and P. Monceau. *"Temperature and pressure dependence of the non-linear properties of $NbSe_3$". Solid State Communications, year =.*

[67] J. Richard, P. Monceau, and M. Renard. *"Nonlinear magnetoresistance and charge-density-wave depinning at liquid-helium temperatures in $NbSe_3$". Phys. Rev. B,* **35** *(9) : p. 4533, March 1987.*

[68] D. Rideau, P. Monceau, R. Currat, H. Requardt, F. Ya. Nad, J. E. Lorenzo, S. Brazovskii, C. Detlefs, and G. Grubel. *"X-ray scattering evidence for macroscopic strong pinning centers in the sliding cdw state of $NbSe_3$". Europhys. Lett.,* **56** *(2) : p. 289, October 2001.*

[69] K. L. Ringland, A. C. Finnebrock, Y. Li, J. D. Brock, S. G. Lemay, and R. E. Thorne. *"Sliding charge-density waves as rough growth fronts". Phys. Rev. B,* **61** *(7) : p. 4405, February 1999.*

[70] K. L. Ringland, A. C. Finnefrock, Y. Li, J. D. Brock, S. G. Lemay, and R. E. Thorne. *"Scaling in charge-density-wave relaxation : Time-resolved x-ray scattering measurements". Phys. Rev. Lett.,* **82** *(9) : p. 1923, March 1999.*

[71] H. Kawamoto S. Tanda, and, Y. Okajima M. Shiobara, and, and K. Yamaya. *"Ring-shaped crystals of $NbSe_3$ and TaS_3". J. Phys IV,* **9** *(Pr10) : p. 379, December 1999.*

[72] Marie-Claire SAINT-LAGER. *"Etude de la cohérence de phase des ondes de densité de charge". thèse doctorale, UJF, 1988.*

[73] S. Shapiro. *"Josephson currents in superconducting tunneling : The effect of microwaves and other observations". Phys. Rev. Lett.,* **11** *(2) : p. 80, July 1963.*

[74] R. E. Thorne, J. S. Hubacek, W. G. Lyons, J. W. Lyding, and J. R. Tucker. *"ac-dc interference, complete mode locking, and origin of coherent oscillations in sliding charge-density-wave systems". Phys. Rev. B,* **37** *(17) : p. 10055, June 1988.*

[75] R. E. Thorne, W. G. Lyons, J. W. Lyding, J. R. Tucker, and John Bardeen. *"Charge-density-wave transport in quasi-one-dimensional conductors. i. current oscillations". Phys. Rev. B,* **35** *(12) : p. 6348, April 1987.*

[76] M. Tinkham. *Introduction to superconductivity. McGraw-Hill, New York, 2nd edition, 1996.*

[77] M. Tinkham and J. Clarke. *"Theory of pair-quasiparticule potentiel difference in nonequilibrum superconductors". Phys. Rev. Lett.,* **28** *(21) : p. 1368, May 1972.*

[78] Yoshihiko Togawa, Ryuichi Abiru, Katsuya Iwaya, Haruhisa Kityano, and Atsutaka Maeda. *"Direct observation of the washboard noise of a driven vortex lattice in high-temperature superconductor, $bi_2sr_2cacuo_y$". Phys. Rev. Lett.,* **85** *(17) : p. 3716, October 2000.*

[79] I. Tutto and A. Zawadowski. *"Quantum theory of local perturbation of the charge density wave by an impurity friedel oscillations". Phys. Rev. B,* **32** *(4) : p. 2449, August 1985.*

[80] L. J. van der Pauw. *"Determination of resitivity tensor and hall tensor of anisotropic conductors". Philips Res. Repts.,* **16** *: p. 187, 1961.*

[81] M. I. Visscher, G. Gerrit, and E. W. Bauer. *"Mesoscopic charge-density-wave junctions". Phys. Rev. B,* **54** *(4) : p. 2798, July 1996.*

[82] C. N. Young. *"Concept of off-diagonal long-range order and the quantum phases of liquid he and of superconductors". Rev. Mod. Phys.,* **34** *(4) : p. 694, October 1962.*

[83] O. Laborde and Yu. I. Latyshev, P. Monceau, and S. Klaumunzer. *"Aharonov-bohm effect on charge density wave (cdw) moving through columnar defects in $NbSe_3$". Phys. Rev. Lett.,* **78** *(5) : p. 919, February 1997.*

[84] S. Yue, M. Tian, and Y. Zhang. *"Modulation of the transverse current effect of charge density waves in* $KMoO_3$*". Phys. Rev. B,* **64** *: p. 113102, August 2001.*

[85] H. S. J. Van Der Zant, E. Slot, S. V. Zaitsev-Zotov, and S. N. Artemenko. *"Negative resistance and local charge-density-wave dynamics". Phys. Rev. Lett.,* **87** *(12) : p. 126401, September 2001.*

[86] Bartosz ZAWILSKI. *"Mise en évidence et étude d'unne nouvelle phase dans la famille des bronzes de molybdène". thèse doctorale, UJF, 1998.*

[87] A. Zettl and G. Grüner. *"Onset of charge-density-wave conduction : Switching and hysteresis in* $NbSe_3$*". Phys. Rev. B,* **26** *(4) : p. 2298, August 1982.*

Résumé : "Étude des propriétés mésoscopiques dans les systèmes quasi-unidimensionnels à ondes de densité de charge."

Nous avons étudié les propriétés de transport des ondes de densité de charge dans le composé quasi-unidimensionnel $NbSe_3$, à l'échelle micronique et submicronique (jusqu'à 300nm). Nous avons mis au point un process de salle blanche pour la réalisation de microstructures à onde de densité de charge, connectées électriquement par des contacts ohmiques. Cela nous permit de réaliser des expériences sur l'effet d'une force perpendiculaire au mouvement d'une onde de densité de charge et d'observer que la réduction du champ seuil de dépiégeage mesuré précédemment par un autre groupe était liée à des inhomogénéités d'injection de courant et non à une augmentation de la cohérence spatiale du condensat. Nous avons également étudié l'influence de l'effet de taille géométrique et de la gravure sur les propriétés des échantillons comme le champ seuil ou la température de transition.

De plus, nous avons effectué des mesures couplées transport/rayons X à haute résolution à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility). Nous avons observé un accroissement de la cohérence spatiale du condensat quand la cohérence temporelle augmente et nous avons étudié différents mécanismes d'interaction entre deux ondes de densité de charge.

Mots clefs :

Onde de densité de charge, conducteurs quasi-unidimensionnels, mésoscopie, transport, rayons-X.

Abstract : "Study of the mesoscopic properties of charge density waves in quasi one-dimensional systems."

We studied the transport properties of the charge density waves of the quasi-one-dimensional conductor $NbSe_3$, at micron and submicron scale (down to 300 nm) and at low temperature (down to 4 K). We have developed a clean room process for microfabrication of charge density wave devices electrically connected by ohmic contacts. This allowed us to perform experiments on the effect of a force transverse to the motion of a charge density wave, we showed that the reduction of the threshold depinning field mentioned previously by another group was related to current injection inhomogeneity instead of an enhancement of the spatial coherence of the condensate. We also studied the influence of the microfabrication such as constrictions or etching on the properties of the samples, like the depinning field or transition temperature.

Moreover, we carried out coupled transport / high resolution X-ray experiments at ESRF (European Synchrotron radiation facility). We observed an increase in the spatial coherence of the condensate when the temporal coherence is enhanced and we investigated several mechanisms of interactions between two charge density waves.

Key words :

charge density wave, quasi one-dimensional conductors, mesoscopy, transport, X-rays.